The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ集光特性変化機構の解明とレーザ衝撃加工への展開
Author(s)	西端, 樹
Citation	大阪大学, 2024, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/96072
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

博士学位論文

大気の電離閾値を超える
超短パルスレーザ集光特性変化機構の解明と
レーザ衝撃加工への展開

西端　樹

2024 年 1 月

大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻

研究概要

本論文は、著者が大阪大学大学院工学研究科博士課程において行った「大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ集光特性変化の解明と衝撃加工への展開」に関する研究の成果を纏めたものである。

超短パルスレーザ加工による生産性の向上と付加価値の向上は、次世代のものづくり産業に貢献する。近年、生産性向上のために、レーザ加工の学理解明に取り組まれている。適切なレーザ加工パラメータの提案と機械的な制御の実現により、エネルギー効率、時間効率、加工品質に優れた超短パルスレーザ加工が実現できる。

大気の電離閾値を超える超短パルスレーザは、レーザ集光過程で大気の電離閾値を超え、レーザ集光特性が変化する。そのため、レーザ衝撃加工などの高フルエンスを必要とする超短パルスレーザ加工において、レーザ集光特性理解は不可欠である。そこで、レーザパラメータや集光条件に応じたレーザ集光特性の解明と、それらがレーザ衝撃加工に及ぼす影響の解明に取り組んだ。

以下に各章の概要を示す。

第 1 章では、超短パルスレーザ加工の基本的な物理現象とその実用化、そして高フルエンス領域での超短パルスレーザ衝撃加工に関するこれまでの研究結果について説明した。また、高フルエンス領域での超短パルスレーザの集光特性変化に焦点を当て、大気の非線形光学現象の影響について説明した。最後に、これらの背景に基づいて、本研究の意義と目的を明示した。

第 2 章では、レーザ伝搬現象の基本である線形伝搬方程式について説明した後、非線形伝搬における方程式の導出について説明した。特に、非線形伝搬計算において用いられる非線形シュレディンガー方程式は、超短パルスレーザ加工分野のレーザ伝搬計算にも適用可能であることを示した。

第 3 章では、大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ加工におけるフェムト秒からピコ秒領域のパルス幅依存性に着目し、アブレーションやピーニング加工に及ぼすパルス幅の影響について述べた。この結果から、フェムト秒パルス条件ではレーザ集光過程でレーザ発散が生じ、アブレーション深さの減少やピーニング効果の低減が明らかとなった。ピコ秒パルス条件ではレーザ集光過程のレーザ発散を抑制でき、アブレーション加工やピーニング加工に適切な条件となることを示した。さらに長い数ピコ秒パルスでは熱影響が生じ、加工に悪影響を及ぼすと考えられた。そのため、大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ加工において、適切なパルス幅の選択が効果的であることが示された。

第 4 章では、大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ集光特性におけるフェムト秒からピコ秒領域のパルス幅依存性に着目し、数値シミュレーションを用いてレーザ集光特性に及ぼす大気の非線形光学現象の影響とそのメカニズムについて述べた。この結果から、大気の電離閾値を超える高強度のレーザ集光時には、大気プラズマの影響を受け、レーザが線形集光時の焦点位置よりも上流側で発散することが示された。ピコ秒パルス条件では、レーザ強度が低下することで大気の電離が抑制され、レーザ発散を抑制でき、加工に適切なレーザ集光条件となることが示された。レーザ集光時の飽和強度やフルエンスは、パルス幅や開口数に応じて変化することを示し、高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工におけるレーザパラメータ選定に貢献した。

第 5 章では、大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ加工におけるサブ mJ から数 mJ のパル

スエネルギー依存性に着目し、アブレーションやピーニング加工に及ぼすパルスエネルギーの影響について述べた。集光条件およびパルス幅が同一の条件において、パルスエネルギーの増加に伴いレーザ発散が顕著となり、最集光位置でのアブレーション深さは増加せず、アブレーション径の拡大が生じることが示された。大気の非線形光学現象を考慮したレーザ伝搬計算により、パルスエネルギーを増加させても、レーザ集光時の最大フルエンスは高まらないことが示された。また、ピーニング効果はアブレーション径に依存して深くまで導入できることが示唆され、レーザ衝撃加工にはフルエンスだけでなくアブレーション径の重要性も示された。

第 6 章では、第 3 章から第 5 章までに得られた知見を基に、高フルエンス条件を照射可能な高開口数条件でのレーザ集光特性について述べた。大気プラズマが飽和した位相変化量を上回る高開口数条件では、大気プラズマによるレーザ強度の制約を抑制することができ、大気の電離閾値であるレーザ強度 10^{14} W/cm^2 を一桁上回るレーザ強度を集光照射可能であることが示された。パルスエネルギーに上限がある場合には、高開口数によるレーザ集光は表層の塑性変形量の増加の観点から有効であり、パルスエネルギー3.8 mJ の高開口数条件が最も良好なピーニング効果を得られた。本研究室で扱えるパルスエネルギーの範囲内で、ピーニング加工に最適な条件が得られたと考えられる。また、レーザ衝撃加工に及ぼすフルエンスやアブレーション径の影響について述べた。高フルエンスは衝撃圧力を高め、アブレーション径は衝撃波伝搬挙動を司り、深い領域までの衝撃圧縮およびピーニング効果付与に貢献することが示された。さらに、高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工を最適化するためのレーザパラメータや集光条件について結論を導いた。

最後に、第 7 章において本研究で得られた成果を総括した。大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ集光特性の網羅的な理解やピーニング加工のレーザパラメータ依存性が明らかとなった。本研究により、大気の電離閾値を超える高フルエンス領域の超短パルスレーザ衝撃加工において、レーザパラメータの選定からピーニング効果付与までの学理を構築できた。

目次

頁

第 1 章　緒論 1

1-1　超短パルスレーザ加工 1

1-1-1　レーザ 1

1-1-2　レーザ加工 2

1-1-3　超短パルスレーザ加工 2

1-1-4　超短パルスレーザ加工による機能性付与 4

1-2　超短パルスレーザアブレーションと衝撃波 6

1-2-1　アブレーション 6

1-2-2　超短パルスレーザアブレーションの素過程 7

1-2-3　レーザ誘起衝撃波 12

1-3　高フルエンス領域における超短パルスレーザ加工 14

1-3-1　レーザ衝撃加工 14

1-3-2　レーザピーニング 14

1-3-3　大気中での高強度超短パルスレーザ加工 17

1-3-4　大気中の超短パルスレーザ伝搬に作用する非線形光学現象 17

1-4　本研究の課題設定と目的 25

1-5　論文構成 28

参考文献 30

第 2 章　大気の非線形光学現象を考慮したレーザ伝搬計算方法 41

2-1　緒言 41

2-2　真空中のレーザ伝搬理論 41

2-3　線形分極を考慮したレーザ伝搬理論 43

2-4　非線形分極を考慮したレーザ伝搬理論 48

2-5　非線形伝搬方程式の近似手法 49

2-5-1　パルス領域座標系における波動方程式 49

2-5-2　周波数領域表示した波動方程式 54

2-5-3　パルス領域座標系における時間軸、周波数領域の包絡線伝搬方程式 55

2-5-4　緩包絡線近似を適用した包絡線伝搬方程式 59

2-5-5　分散、群速度分散の近似 60

2-6　大気の非線形光学現象を考慮した非線形シュレディンガー方程式 62

2-7　理想的なガウシアンレーザ集光特性 72

2-8　結言 81

参考文献 82

第 3 章　大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ加工における フェムト秒-ピコ秒領域パルス幅依存性 83
3-1　緒言 83
3-2　実験方法 84
3-2-1　供試材料 84
3-2-2　レーザ照射条件、レーザ加工条件 84
3-2-3　光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡による照射痕観察 85
3-2-4　レーザ顕微鏡によるアブレーション観察 85
3-2-5　cosα 法による深さ方向の残留応力分布計測 86
3-3　実験結果 86
3-3-1　光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡による照射痕観察結果 86
3-3-2　レーザ顕微鏡によるアブレーション観察結果 92
3-3-3　cosα 法による深さ方向の残留応力分布計測結果 96
3-4　考察 98
3-4-1　照射領域推移、アブレーション領域推移のパルス幅依存性 98
3-4-2　ピーニング効果に及ぼすパルス幅の影響 98
3-5　結言 100
参考文献 101

第 4 章　大気の電離閾値を超えるフェムト秒-ピコ秒パルス レーザ集光特性に及ぼす大気の非線形光学現象の影響 103
4-1　緒言 103
4-2　実験・計算方法 104
4-2-1　大気の非線形光学現象によるレーザ波長変化計測 104
4-2-2　大気の非線形光学現象を考慮したレーザ集光特性変化の数値計算方法 106
4-3　実験結果 118
4-3-1　バンドパスフィルタを用いたエネルギー減衰計測結果 118
4-3-2　分光器を用いたレーザ波長プロファイル計測結果 119
4-4　集光特性の数値計算結果 121
4-4-1　集光時レーザ強度分布のパルス幅依存性 121
4-4-2　集光時フルエンス分布のパルス幅依存性 125
4-4-3　集光時フルエンス分布と照射領域、アブレーション領域推移の比較 126
4-4-4　大気の非線形光学現象による周波数スペクトル変化 127
4-4-5　集光時の各位置における時空間強度分布 129
4-4-6　光カー効果の影響 130

4-4-7　プラズマ生成のパルス幅依存性　131
4-4-8　電離メカニズムのパルス幅依存性　132
4-4-9　大気への損失エネルギー　133
4-5　考察　134
4-5-1　レーザ照射位置制御の指針　134
4-5-2　ドライレーザピーニングのレーザ照射パラメータ依存性　135
4-5-3　大気の非線形光学現象のパラメータ化によるレーザ発散時レーザ強度の推定　137
4-5-4　大気の非線形光学現象のパラメータ化によるレーザ発散位置の推定　141
4-6　結言　144
参考文献　146

第 5 章　大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ加工における サブ mJ-数 mJ パルスエネルギー依存性　149
5-1　緒言　149
5-2　実験・計算方法　150
5-2-1　供試材料　150
5-2-2　レーザ照射条件、レーザ加工条件　150
5-2-3　光学顕微鏡による照射痕観察　151
5-2-4　レーザ顕微鏡によるアブレーション観察　151
5-2-5　cosα 法による深さ方向の残留応力分布計測　151
5-2-6　非線形伝搬計算方法　152
5-3　実験結果　153
5-3-1　光学顕微鏡による照射痕観察結果　153
5-3-2　レーザ顕微鏡によるアブレーション観察結果　155
5-3-3　cosα 法による深さ方向の残留応力分布計測結果　159
5-4　レーザ集光特性の数値計算結果　161
5-4-1　集光時レーザ強度分布のパルスエネルギー依存性　161
5-4-2　集光時フルエンス分布のパルスエネルギー依存性　164
5-4-3　集光時フルエンス分布とアブレーション領域推移の比較　165
5-5　考察　166
5-5-1　アブレーション効率とレーザ照射位置制御の指針　166
5-5-2　焦点位置近傍のアブレーションに及ぼすプリパルスポストパルスの影響　167
5-5-3　ドライレーザピーニングのレーザ照射パラメータ依存性　168
5-5-4　大気の非線形光学現象のパラメータ化による集光時レーザ強度の推定　170
5-5-5　大気の非線形光学現象のパラメータ化によるレーザ発散位置の推定　171
5-6　結言　175
参考文献　177

第 6 章　高開口数を用いた高フルエンス領域
超短パルスレーザ衝撃加工 179
6-1　緒言 179
6-2　実験・計算方法 179
6-2-1　供試材料 179
6-2-2　レーザ照射条件、レーザ加工条件 180
6-2-3　レーザ顕微鏡によるアブレーション観察 180
6-2-4　cosα 法による深さ方向の残留応力分布計測 180
6-2-5　球面収差を考慮した線形集光計算方法 180
6-3　様々な開口数条件におけるレーザ集光特性 182
6-3-1　焦点距離 30 mm 球面平凸レンズを用いたレーザ集光特性 182
6-3-2　焦点距離 20 mm 球面収差補正対物レンズを用いたレーザ集光特性 185
6-3-3　焦点距離 100 mm 球面平凸レンズを用いたレーザ集光特性 188
6-3-4　アブレーション深さのフルエンス依存性 191
6-4　数 10~100 J/cm^2 のフルエンス領域におけるドライレーザピーニング特性 192
6-4-1　焦点距離 20 mm 球面収差補正対物レンズを用いた数 mJ レーザ加工 192
6-4-2　焦点距離 20 mm 球面収差補正対物レンズを用いたサブ mJ レーザ加工 194
6-4-3　焦点距離 100 mm 球面平凸レンズを用いたレーザ加工 196
6-5　考察 198
6-5-1　高開口数条件における大気の非線形光学現象の影響 198
6-5-2　ピーニング効果付与に及ぼすフルエンスとアブレーション径の影響 200
6-5-3　フェムト秒パルスレーザ誘起衝撃波におけるフルエンスと衝撃圧力の関係性 202
6-5-4　衝撃波伝搬深さの衝撃圧力とアブレーション径依存性 203
6-6　結言 210
参考文献 212

第 7 章　結論 213

謝辞 217

本研究に関する発表論文 219

第 1 章　緒論

1-1　超短パルスレーザ加工

1-1-1　レーザ

レーザ（Laser : Light amplification by stimulated emission of radiation）は、指向性と収束性に優れ、ほぼ単一波長の電磁波（コヒーレント光）を発生させる装置である。コヒーレンスは可干渉性を指し、コヒーレントなレーザ光は長距離にわたって拡散することなく伝搬でき、非常に小さな面積に集光することが可能である。レーザの基本原理は 1958 年に C. H. Townes 博士によって提案され[1]、1960 年に T. Maiman 博士によってレーザ発振が実現した[2]。レーザは学術分野と産業分野に革新的な進展をもたらし、20 世紀最大の発明の一つとされている。

レーザは連続レーザとパルスレーザの二つの主要な種類に分類される。パルスとは、周期的な信号の短時間の強まりを指す。パルス幅の短いレーザは短時間の物理現象を捉えることが可能であり、短パルス化は科学技術に大きな恩恵をもたらす。2023 年現在、ミリ（10^{-3}）秒、マイクロ（10^{-6}）秒、ナノ（10^{-9}）秒、ピコ（10^{-12}）秒、フェムト（10^{-15}）秒、そしてアト（10^{-18}）秒まで実現されている[3]。サブナノ秒からナノ秒のパルス幅を持つレーザは短パルスレーザ、数フェムト秒から十ピコ秒程度のパルス幅を持つレーザは超短パルスレーザ、アト秒のパルス幅を持つレーザは極短パルスレーザと呼ばれることが多い。Fig. 1.1 に示すように、これらのレーザの種類はピーク出力の桁が異なり、用途に応じて適切なレーザ装置を選択する必要がある。これらのレーザは材料科学、医療、計測などの様々な分野で活用されている。

超短パルスレーザは非常に短いパルス幅を持つため、μJ 程度の低エネルギーでも高いレーザ強度（W/cm^2）を実現する。しかし、この高いレーザ強度は通常、レーザ装置内部のレーザ媒質を損傷させるため、高パルスエネルギーの獲得は困難であった。1985 年に D. Strickland 博士と G. Mourou 博士らが開発したチャープパルス増幅法（CPA: Chirped Pulse Amplification）により、高パルスエネルギーの獲得が実現された[4]。これにより、超短パルスレーザを用いた研究が大いに拡充され、その短いパルス幅と高いレーザ強度を活かして、材料加工、計測、非線形光学、高強度場科学、通信などの幅広い分野で重要な役割を果たしている。

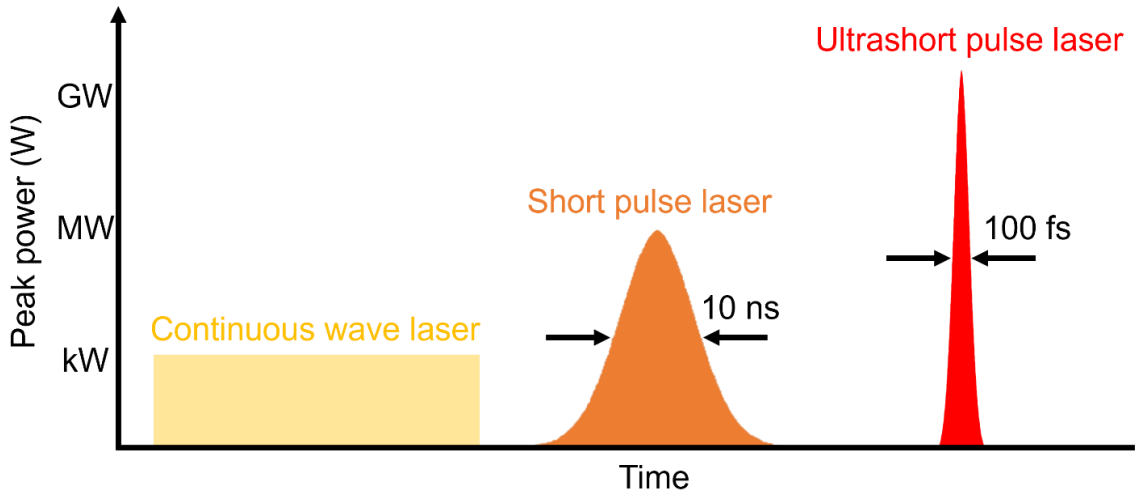


Fig. 1.1 Schematic diagram of the approximate peak power of continuous wave and pulse laser.

1-1-2　レーザ加工

2023 年現在の日本において、少子高齢化により生産労働人口が減少している状況にある。この労働力の低下に対処するためには、国民一人当たりの労働生産性を向上させることが不可欠である。労働生産性の向上には生産効率の向上や付加価値の向上が大きな意義を持つ。特にものづくり産業においては、大量生産と IoT 最適化による業務効率化、生産技術の改善による製造時間の短縮、多品種少量生産による付加価値向上、そして新技術開発による付加価値向上など、多岐にわたる取り組みが行われ、労働生産性の向上が模索されている。レーザ技術は幅広い産業で活躍し、加工や計測、センシングなどの観点で労働生産性の向上に大きく貢献している。

レーザ加工は自動車や鉄道車両、航空機などの産業において、材料の穴あけ、切断、表面処理、溶接などの手段として広範に活用されている。レーザ加工の利点は多岐にわたる。例えば、レーザは優れた集光品質を持っており、集光レンズの選定によって集光面積を自由に調整できる。レーザエネルギーや照射時間の調節により、投入エネルギーを柔軟に調整できる。さらに、レーザはファイバーやミラーを用いて長距離の伝送が可能であり、ガルバノスキャナを利用することでレーザ照射位置の二軸制御や三軸制御が実現できる。これにより、立体物に対しても迅速に多点照射やライン照射を行うことができる。また、レーザは金属材料だけでなく、ガラス、プラスチック、セラミックス材料など多様な材料に対して加工が可能である。最適なレーザ加工パラメータの調整は、これら多様な材料や加工用途に合わせて行うことが重要であり、労働生産性向上に不可欠である。

1-1-3　超短パルスレーザ加工

超短パルスレーザ加工は、ピコ秒からフェムト秒のパルス幅を持つ超短パルスレーザを用いて行われる加工方法である。この手法は、1996 年に初めて金属への精密な穴あけや除去加工が報告され、その後、その高い精度と品質から広く注目されている[5-7]。超短パルスレーザ加工は、瞬間的なエネルギー供給によって物質の除去が可能なアブレーション現象を生じる。また、パルス幅の短さにより熱の拡散が極めて小さく、ほとんど熱影響を及ぼさずに微細で高品質な加工が実現できる。Fig. 1.2 は、(a)フェムト秒、(b)ピコ秒、(c)ナノ秒パルスレーザによる金属穴あけ加工の走査型電子顕微鏡(SEM: Scanning electron microscope)による観察結果を示している。フェムト秒パルスレーザによる加工ではバリがなく、溶融の痕跡は見られない。これは瞬間的なエネルギー供給により、溶融を介さずに物質を蒸発させることができるためである。一方、ピコ秒パルスレーザによる加工では徐々に溶融が見られ、バリが形成され始める。ナノ秒パルスレーザによる加工ではバリが大きく残存している。そのため、加工後にバリの除去が必要な場合がある。また、溶融を介するため、温度履歴の変化が大きく、材料特性に影響を及ぼす可能性がある。このように、パルス幅の短いレーザ加工では熱影響を最小限に抑え、高品質な除去加工が可能である。また、レーザ集光時の強度分布を適切に制御し、アブレーション閾値を超える領域を設定することで、回折限界よりも微細な加工も実現できる[8]。これは穴あけ加工に限らず、切断加工にも適用できる[9]。Fig. 1.3 に示すように、レーザ照射を走査しながら行い、走査速度を制御して照射回数を調整することで、高品質な切断加工を実現できる。

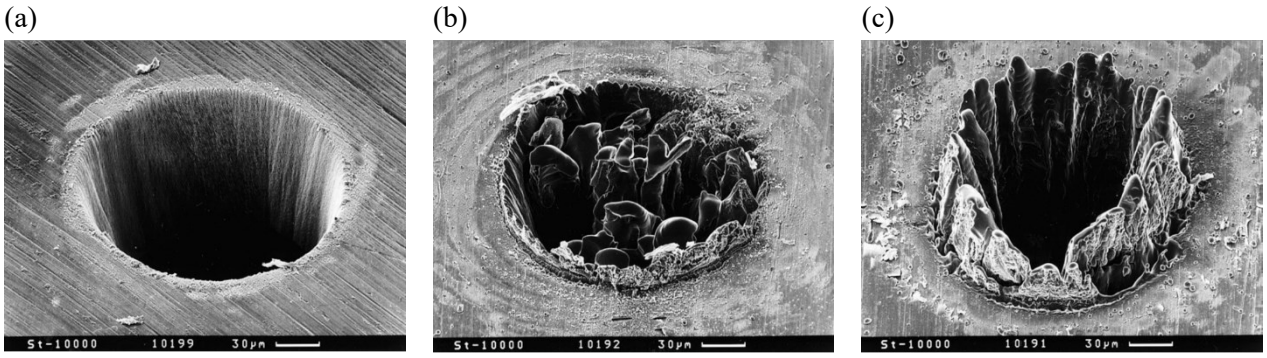


Fig. 1.2 SEM photograph of a hole drilled in a 100 μm thick steel foil with (1) 200 fs, 120 μJ, F = 0.5 J/cm^2, (b) 80 ps, 900 μJ, F = 3.7 J/cm^2, (c) 3.3 ns, 1 mJ, F = 4.2 J/cm^2, laser pulses at 780 nm [5].

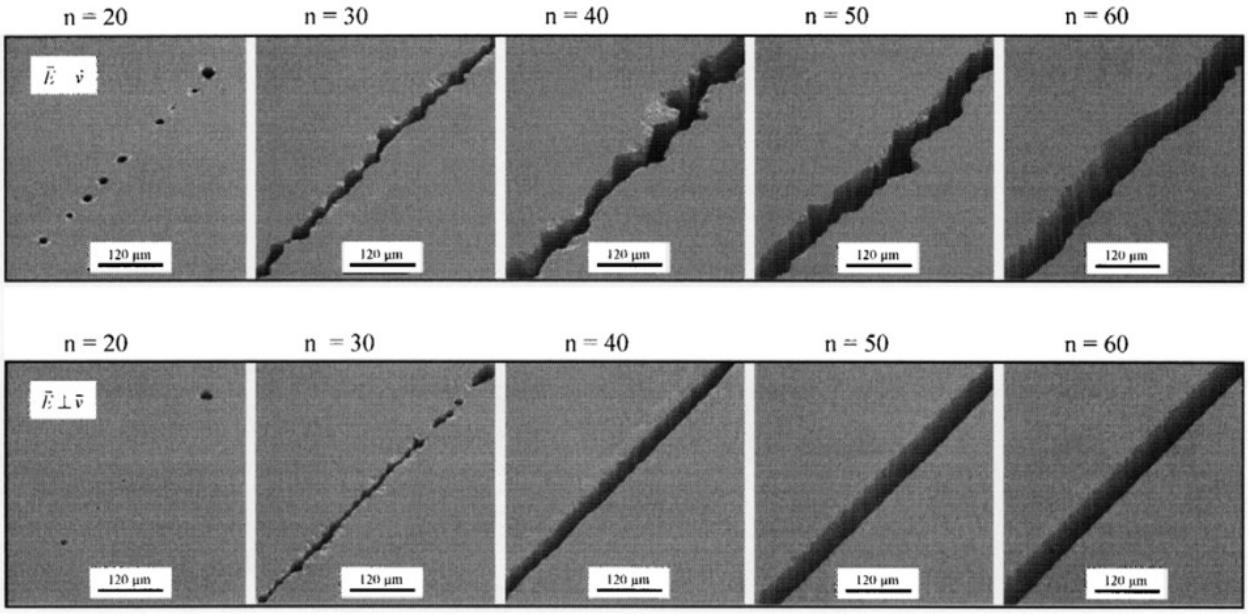


Fig. 1.3 Development of the kerf during cutting of Si using femtosecond laser pulses (wavelength: 780 nm, pulse width: 150 fs, repetition rate: 1 kHz, pulse energy: 600 μJ, cutting speed: 30 mm/min, number of repetitions: n) [9].

超短パルスレーザ加工は、穴あけや切断加工に加えて、レーザ誘起表面周期構造（LIPSS: Laser induced periodic surface structure）を利用した特徴的な加工方法が存在する。LIPSS は、材料を溶融させない程度の弱いレーザを照射することで、材料表面に形成されるレーザ波長程度の周期構造を指す[10]。LIPSS の形成メカニズムは、入射光と材料表面にできるプラズマ波[11]、または散乱波[12]との干渉によって定在波が形成されることに起因していると考えられている。LIPSS はルビーレーザが開発された直後に初めて報告され、連続レーザでも形成は可能であるが、超短パルスレーザを用いることでより鮮明な LIPSS の形成や波長よりも短い周期での LIPSS 形成が可能である[13]。フェムト秒パルスレーザを用いた LIPSS 形成の例を Fig. 1.4 に示す。波長程度の LIPSS は LSFL(low-spatial-frequency LIPSS)と呼ばれ、波長の半分よりも細かな LIPSS を HSFL(high-spatial-frequency LIPSS)と呼ばれる[14]。材料表面にこのような周期構造を形成することで濡れ性、光学機能、潤滑性など、様々な機能を付与することができる。

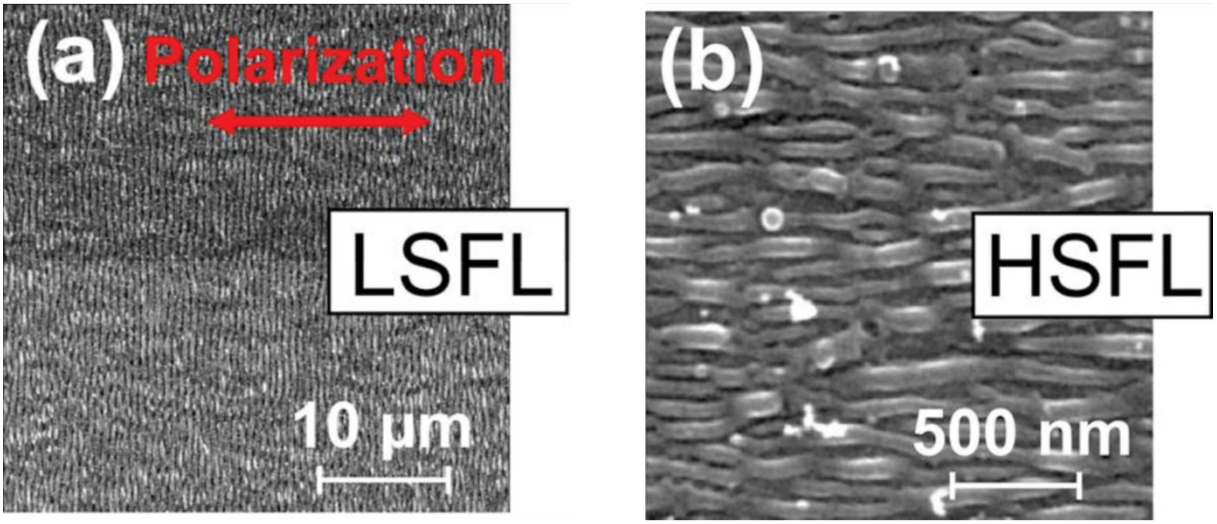


Fig. 1.4 SEM photographs of a titanium sheet surface irradiated by N = 50 fs-laser pulses (laser wavelength: 790 nm, pulse width: 30 fs, and repetition rate: 1 kHz) in air. (a) Fluence 0.13 J/cm^2, (b) 0.09 J/cm^2, the horizontal arrows indicate the orientation of the laser beam polarization [14].

1-1-4　超短パルスレーザ加工による機能性付与

穴あけや切断加工は石器時代から行われてきた原始的な加工方法であるが、これをマイクロやナノメートルのスケールで実現することは重要な意義がある。自然界の植物や動物、および物質が持つマイクロやナノメートルスケールの立体的な微細構造は、多様な機能や特性を提供する。これらの微細構造を精密に模倣することで、材料に多くの特性を付与する可能性が広がる。このアプローチはバイオミメティクスとして知られ、超短パルスレーザ加工でも幅広く活用されている。以下に、超短パルスレーザ加工によって付与できる機能性の代表例をいくつか紹介する。まず 1 つ目は濡れ性の制御である。自然界では、蓮の葉などが表面に微細な突起構造を持つことで撥水性を有している（ロータス効果）。化学的手法としてはフッ素化合物コーティングにより撥水性を得ることができるが、耐久性の課題がある。そのため、蓮の葉のような物理的な構造を造形するアプローチは有意義である。Fig. 1.5 と Fig. 1.6 に示すように、超短パルスレーザ照射により、材料表面に LIPSS 加工や周期的な穴あけ加工を施すことで、金属やポリマーなどの材料に撥水性を付与できる[15,16]。これらの技術は半導体製造工程でのエッチング液の回収、対象物表面の液体洗浄、ミラーへの結露防止、防曇などに貢献する。また、撥水処理を施した領域をルート状にすることで、流体の移動を制御できるマイクロ流路を作成できる。マイクロ流路は微小な試料や試薬の効率的な取り扱いに役立ち、ラボオンチップ技術で幅広く使用され、医療、生物学、化学分野で重要な役割を果たしている。さらに、微弱なレーザ照射により表面粗さを低減し、親水性を付与することも可能である[17]。親水性の付与は溶剤の飛散を防ぎ、流体摩擦の低減に利用できる。このように、超短パルスレーザ加工による濡れ性の制御は多くの用途に適用できる。

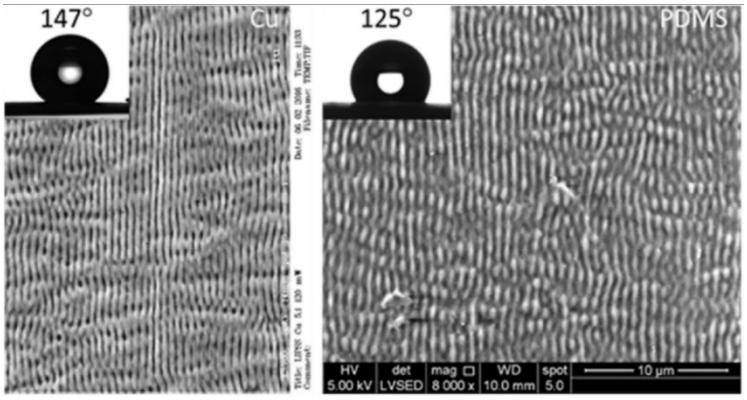


Fig. 1.5 LIPSS created on copper showing a water contact angle of 147°(left) and on PDMS (Polydimethylsiloxane) showing a contact angle of 125°(right) [15].

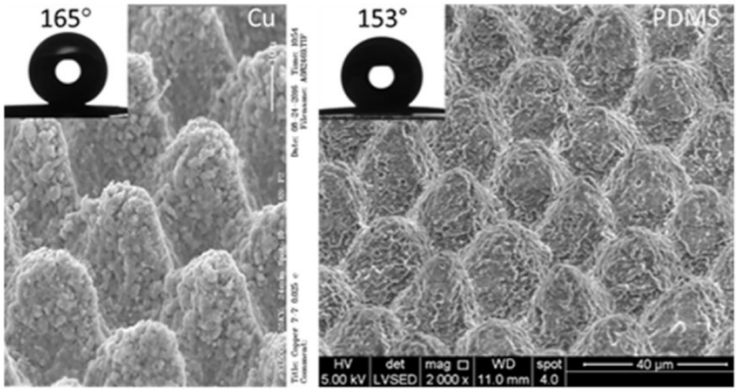


Fig. 1.6 Micro-bumps with nano-bumps created on copper showing a water contact angle of 165°(left) and on PDMS showing a contact angle of 153°(right) [15].

2 つ目は光学特性の制御である。これは材料の光の吸収率や反射率を変化させることを指す。自然界において、蛾の目は表面にある微細な突起や凹凸の配列によって、光の反射率を極めて低くし、夜間や暗所での光の収集に優れる（モスアイ構造）。また、凹凸の配列によって特定の波長を反射することもできる。この構造を材料表面に造形することで、特定の波長を透過、反射するフィルターやコーティングとして応用することができる[18,19]。Takaku らは、Fig. 1.7 に示すようにアルミナの超短パルスレーザ加工によりモスアイ構造を造形し、大面積の赤外線吸収フィルターを製造した。このフィルターは電波望遠鏡の GreenBank 望遠鏡の MUSTANG2 レシーバーに搭載され、宇宙線観測研究に貢献している。他にも、反射率を低減したディスプレイやエネルギー変換効率の良い太陽電池、特定の波長を反射させる金属への着色、加飾への応用がなされている。

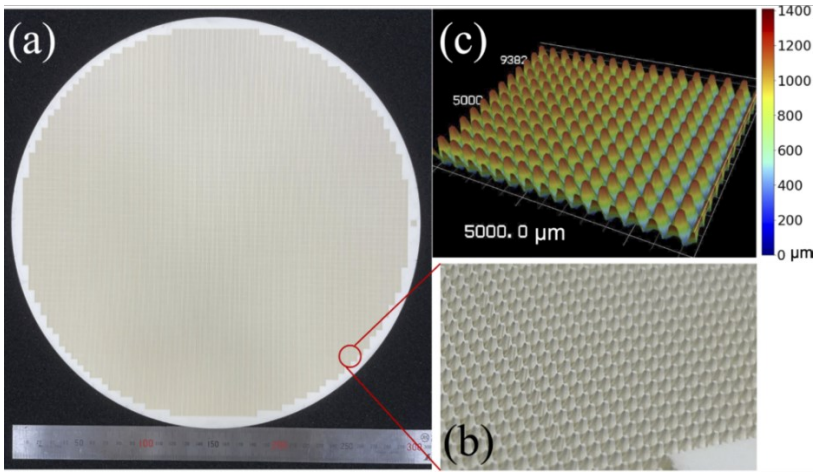


Fig. 1.7 Images of one side of the fabricated filter. The other side is identical. (a) A photograph of the entire filter. The ruler is graduated up to a length of 300 mm. (b) An enlarged area. (c) Rendering of confocal microscopy scanning of the SWS [18].

3 つ目は耐摩耗性の獲得である。Fig. 1.8 に示すように、材料表面に孔や溝形状を形成することで、これらの領域に潤滑油を保持しやすくし、摩擦係数の低下や摩耗の抑制に貢献する。摩擦は摺動のエネルギー効率を低下させ、摩耗は機械部品の故障を引き起こす可能性があるため、これらの技術は自動車の摺動部品への応用が進んでいる[20]。また、潤滑油の使用量を削減することは、環境問題への取り組みにも貢献する。ここまで述べた特性付与の例は一部に過ぎない。超短パルスレーザによる微細加工は、様々な材料に対して光学特性や力学特性などに付加価値を与えることが可能な優れた技術である。

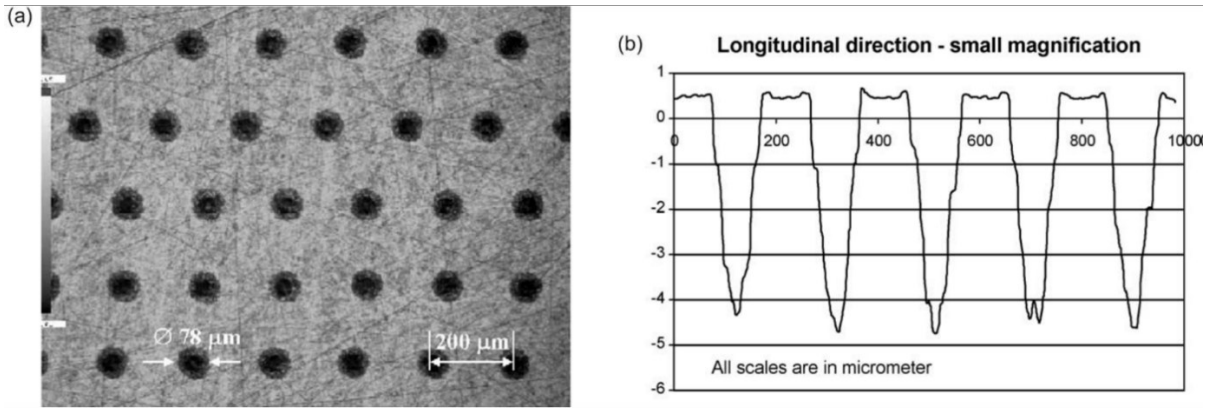


Fig. 1.8 (a) Plane view and (b) 2D image of a laser-dimpled steel sample. Dimples are typically 4 to 5 µm deep and 100 µm in diameter [20].

1-2　超短パルスレーザアブレーションと衝撃波

1-2-1　アブレーション

超短パルスレーザを用いた穴あけや除去加工は、主に低フルエンス領域（0.1 J/cm^2～ 数 J/cm^2）で行われる。なぜなら、高フルエンス領域（10 J/cm^2 以上）での超短パルスレーザ加工では、ナノ秒パルスレーザやピコ秒パルスレーザと同様にバリや熱影響を発生し、超短パルスレーザ加工の非熱的加工や精密な加工が難しくなるためである[21]。産業利用において、材料やパラメータ選択による加工精度、エネルギー効率、時間効率の追求は重要である。そのため、アブレーション現象の物理的な理解は必要不可欠である。本章では、超短パルスレーザアブレーションにおけるレーザパラメータに依存する現象について、実験的な側面から簡潔に説明する。

I. アブレーションのフルエンス依存性：アブレーションはレーザ光の吸収によって始まる現象であり、フルエンス（単位面積あたりのエネルギー）の影響は実験的によく調査されている[21-23]。Fig. 1.9 に示すように、アブレーション深さはフルエンスに依存しており、フルエンスの増加とともにいくつかの特徴的な変化が見られる。例えば銅に対しては、アブレーションは 0.018 J/cm^2 から開始し、0.2 J/cm^2 を境にアブレーション深さが顕著に増加する。0.2 J/cm^2 未満のフルエンス領域ではアブレーション深さが 0.01 nm 以下と微小であるため、観測が難しい。したがって、一般的にアブレーションのフルエンス閾値と言うと、光侵入長の 10 nm 程度のアブレーション深さを指すことが一般的である。フルエンスに対するアブレーション深さの変化は、ネイピア数eの対数を描く近似曲線で表される。これは、レーザ光の吸収過程がネイピア数eの対数関数で記述されるためである。アブレーション深さやフルエンス閾値は金属種によって異なるが、定性的な傾向は一致する[23]。

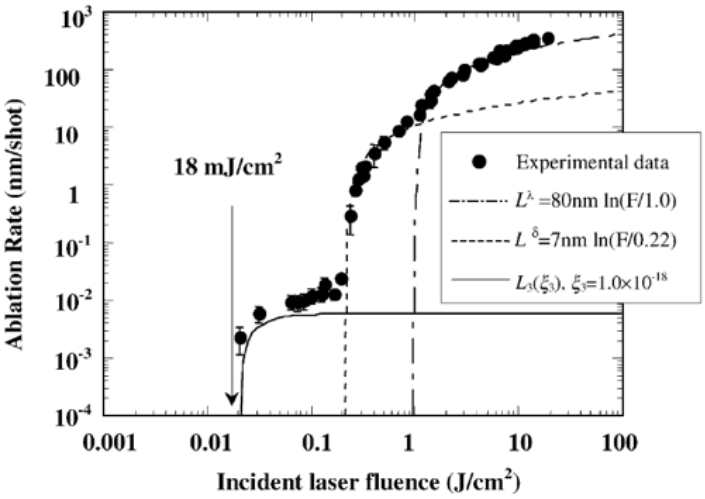


Fig. 1.9 Dependence of the Cu ablation rate on incident laser fluence with 70 fs pulse. The dotted and dashed-dotted curves are the calculated ablation rates based on a thermal model (logarithmic dependence). The solid curve is the calculated ablation rate obtained with the assumption of a 3-photon absorption [22].

II. アブレーションのパルス幅依存性：超短パルスレーザは、およそ 50 fs から数 ps 程度の極めて短いパルス幅を持つ。この広い範囲のパルス幅に対するアブレーションへの影響も実験的な研究が行われている[6,21,24,25]。Fig. 1.10 に示されているように、500 fs から 20 ps のパルス幅では、低フルエンス領域（1.0 J/cm^2 以下）ではアブレーション深さに大きな変化は見られない。しかし、数 J/cm^2 以上の高フルエンス領域では、パルス幅が長い条件ほどアブレーション深さが低下する傾向がある。これはパルス幅が増加すると、熱拡散が増加するためと考えられている。特に、バンドギャップを持つ半導体や高分子材料などの加工対象物では、パルス幅によるアブレーションのフルエンス閾値変化が低フルエンス領域でも顕著である[26-28]。この現象はレーザ吸収過程においてレーザ強度に依存した電子励起プロセスが含まれていることに起因する。

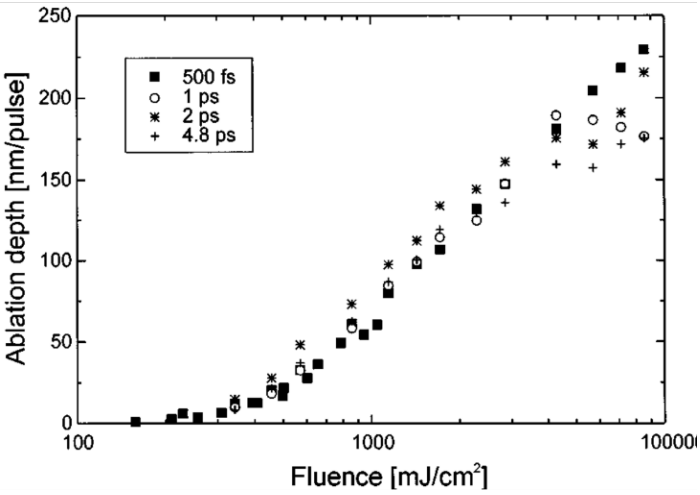


Fig. 1.10 Ablation depth per pulse for copper with 500 fs to 4.8 ps laser pulses [6].

1-2-2　超短パルスレーザアブレーションの素過程

超短パルスレーザアブレーションは、レーザ波長、フルエンス、およびパルス幅に応じて変化する。ここでは、光吸収過程が比較的単純な金属のアブレーションプロセスについて簡潔に説明する。

I. 光吸収過程：金属にレーザを照射したとき、金属中の自由電子がレーザを吸収する。金属のレーザ吸収過程はランベルトベールの法則（Lambert-Beer law）として知られており、金属内部に伝搬するにしたがってレーザ強度が指数関数的に減少する。

$$I(z) = I_0 exp(-\alpha z) \tag{1.1}$$

Iはレーザ強度、zは金属中の伝搬方向座標軸とする。I_0は金属表面に入射されるレーザ強度である。減衰係数αは複素屈折率の虚部、消衰係数κ(ω)を用いて表される。

$$\alpha = \frac{2\omega}{c}\kappa(\omega) \tag{1.2}$$

典型的な光侵入長l_pは減衰係数αの逆数で表され、強度が$1/e$に低下する伝搬距離を表す。

$$l_p = \alpha^{-1} = \frac{c}{2\omega\kappa(\omega)} \tag{1.3}$$

レーザ加工において重要なパラメータはレーザエネルギーの吸収量である。レーザ伝搬時のエネルギー吸収率をA、反射率Rをとすると、エネルギー保存則から反射率と吸収率の合計は 1 である。

$$A + R = 1 \tag{1.4}$$

伝搬方向の各位置におけるエネルギー吸収流束は次のように表される。

$$q = (1 - R) I_0 exp(-\alpha z) \tag{1.5}$$

金属などの物質の屈折率や消衰係数は電磁波の周波数に依存しており、これらの特性は実験的と理論的手法によって求められており、反射率や吸収率は既知のパラメータとして扱うことができる。Table 1 に代表的な金属に対して、波長 800 nm における屈折率、消衰係数、反射率、減衰定数、光侵入長を記す。これらの値やその文献は RefractiveIndex.Info データベースから検索可能である。

Table 1 Optical properties of typical metals for light at a wavelength of 800 nm.

Metal	n: Refractive index	κ: Extinction coefficient	R: Reflection rate	α: Absorption coefficient (m^{-1})	l_p: Penetration depth (nm)
Mg [29]	1.4230	7.1347	0.8997	1.1207×10^{8}	8.9229
Al [30]	2.3737	7.5226	0.8603	1.1817×10^{8}	8.4628
Fe [31]	3.1897	3.9835	0.6182	6.2573×10^{7}	15.981
Cu [30]	0.1051	5.1413	0.9848	8.0759×10^{7}	12.383
Ag [30]	0.0640	5.6781	0.9923	8.9191×10^{7}	11.212
Au [30]	0.1042	5.2237	0.9854	8.2054×10^{7}	12.187

軽金属に対して、波長 800 nm のレーザは垂直入射時に約 90%が反射光となり、吸収されるエネルギーは約 10%である。貴金属に対してはわずか数%しか吸収されない。ただし、この反射率は表面粗さなどの状態にも依存する。可視光の侵入長はほとんどの金属に対して約 10 nm であり、1 波長分の深さも侵入できない。一方、対象物がシリコンやガラスなどの半導体や絶縁体の場合、多光子吸収によって電子励起が生じるため、レーザ吸収過程はより複雑なモデルが必要とされることに注意が必要である。

II. 電子格子相互作用：金属は電子（Electron）と格子（Lattice）から構成される。ここでの格子は金属内の原子が規則的な配置を持つ結晶構造を指す。レーザエネルギーは逆制動放射により電子に吸収され、電子系は加熱される。高エネルギー状態となった自由電子は、レーザ照射領域内の一部の電子である。その結果、電子分布は非平衡状態となり、周囲の電子に対してエネルギーを伝達する。十分なエネルギーを吸収した自由電子は真空準位に励起され、材料表面から大気中へ放出し、失われることもある。電子がエネルギーを伝達する動きは、何らかの粒子に衝突するまで弾道的に遠くまで進む弾道的（バリスティック：Ballistic）伝導と、電子同士の散乱を起こしながら拡散する動きに分けられる[32]。物質内の電子が弾道的に移動できる距離は 10 nm オーダーで、時間に換算すると約 10 fs である。弾道的伝導の後、電子-電子散乱により拡散的なエネルギー伝達となる。次に、ピコ秒程度の時間スケールで電子のエネルギーが格子系に伝達され、電子と格子は熱平衡状態となる。この過程で、電子-格子間のエネルギー移譲の速さを示す物性値として、エレクトロン-フォノンカップリングパラメータが重要となる[33]。光から電子へ、電子から格子へのエネルギー伝達を経て、格子系が蒸発エンタルピーを上回るエネルギーを受け取ることでアブレーションが起こると考えられている。電子温度と格子温度が平衡状態になる時間を衝突緩和時間と呼び、金属の場合は数ピコ秒程度である[34]。電子温度、格子温度の変化の概略を Fig. 1.11 に示す。

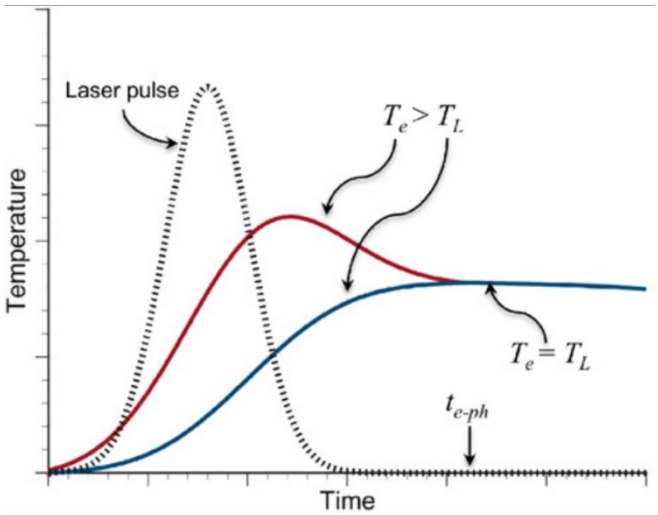


Fig. 1.11 Qualitative time dependence of electron and lattice temperature in the skin layer. The dotted line is a Gaussian shape of a fs-laser pulse; indicates the energy equilibration time [35].

この加熱過程は電子温度T_eと格子温度T_Lにわけて考える二温度モデル（TTM: Two temperature model）を用いて記述されている[36]。

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla \cdot [\kappa_e \nabla T_e] - G(T_e - T_L) + Q \tag{1.6}$$

$$C_L \frac{\partial T_L}{\partial t} = \nabla \cdot [\kappa_L \nabla T_L] + G(T_e - T_L) \tag{1.7}$$

ここで、C_eは電子熱容量、C_Lは格子熱容量、κ_eは電子熱伝導率、κ_Lは格子熱伝導率を表す。Gはエレクトロンフォノンカップリングパラメータである。Qはレーザによる入熱エネルギー(W/m^3)であり、(1.5)式の熱流束の差で表されるため、

$$Q = -\frac{dq}{dz} = \alpha(1 - R) I_0 exp(-\alpha z) \tag{1.8}$$

レーザパルスの時間変化がある場合、I_0を時間依存の形に変更する。格子の熱伝導率は電子の熱伝導率に比べて十分に小さいため、省略しても問題ない。高い電子温度ではフェルミ分布に変化が生じ、伝導帯にないエネルギー準位の低い電子も伝導帯に励起される。したがって、電子熱容量やエレクトロンフォノンカップリングパラメータは電子温度に依存することがある[37]。これらの変化は金属種によって異なることが第一原理計算により示されている[38,39]。数値シミュレーションでは、定数や初等関数を用いて近似されることが一般的である[32,40-47]。TTM を利用することで、実験的に取得が困難な材料の熱力学的変化をシミュレーションすることが可能である。Fig. 1.12 には、TTM による計算例が示されている。レーザを吸収した直後、電子温度は瞬時に高まり、格子温度は数ピコ秒遅れて上昇することが分かる。数ピコ秒後には材料の沸点や相爆発温度を超える温度に達し、次節で説明するレーザ誘起衝撃波を発生する。アブレーション閾値近傍の低フルエンス領域における超短パルスレーザ加工では、光侵入長の範囲内でのアブレーションが支配的であり、熱影響領域は数十 nm に抑制できる。一方で、アブレーション閾値よりも一桁以上高いフルエンス領域における超短パルスレーザ加工では、電子熱拡散によるアブレーションが主導的である。電子熱拡散はフルエンスやパルス幅に応じて増加するため、熱影響領域はマイクロメートルスケールに拡大することが知られている[23,47]。アブレーションや熱影響領域の推定には高温原子の解離プロセスが重要であり、次に示すような分子動力学法が用いられる。

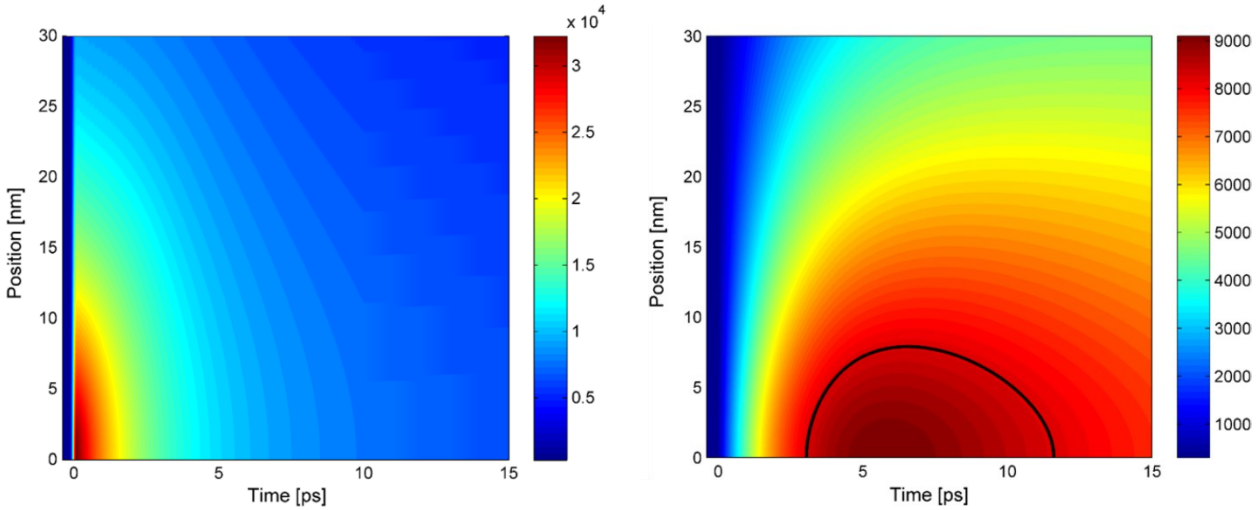


Fig. 1.12 Electron (a) and lattice (b) temperature versus time and position into a copper sample for an absorbed fluence just above the threshold for ablation (0.14 J/cm^2). The black line in (b) indicates the ablation temperature [32].

III. 分子動力学法によるアブレーションシミュレーション：アブレーションモデルの開発は 2000 年代に精力的に行われた。有限要素法を用いたシミュレーションでは、溶融・蒸発による原子の移動、座標系からの消失を考慮するために、アブレーションの判定に基準を設ける必要がある。格子が獲得するエネルギーが蒸発エンタルピーを超えた領域とする方法[32,42]や、蒸発速度を考慮した界面の移動量で判定する方法[40,43,44]がある。原子の移動を明確に考慮するために、分子動力学(MD: Molecular dynamics)シミュレーション[45-49]や流体力学(HD: Hydrodynamics)モデリング[50,51]によって、フルエンスに応じた様々なアブレーション機構が提案され、検討されてきた。Fig. 1.13

には、TTM と MD を組合わせた TTM-MD シミュレーションによるフルエンスに応じたアブレーションモデルが示されている。照射レーザフルエンスがアブレーション閾値近傍では、Fig. 1.13(a)に示すような spallation と呼ばれるプロセスでアブレーションが生じる。これは引張応力により生成される欠陥による内部破壊現象である。アブレーション閾値の 1.2 倍程度のフルエンスでは、Fig. 1.13(b)に示すような phase explosion と呼ばれるプロセスが観察される。これは過熱液体状態から蒸気と液体の混合液滴への急速な移行現象である。アブレーション閾値の 3 倍程度のフルエンスでは、Fig. 1.13(c)に示すような fragmentation および vaporization と呼ばれるプロセスが観察される。Fragmentation は初めは均質な媒体が衝撃や膨張の結果、クラスターの集まりに分解する現象である。Vaporization は蒸発であり、十分に高いエネルギー照射により、結合を完全に切断し気体化し、高速で膨張する現象である。このように、フルエンスの増加に応じて放出されるクラスターのサイズが細かくなる。どのアブレーション機構においても、高温原子の解離プロセスには数十ピコ秒以上が必要であり、これらの時間が長いほど材料の熱影響領域が拡大する。レーザ吸収量は伝搬深さに応じて減少するため、Fig. 1.13(d)に示すように、材料表面からの深さに応じてアブレーション機構が異なる。これらの機構はいくつかの実験結果からも支持されている[52,53]。

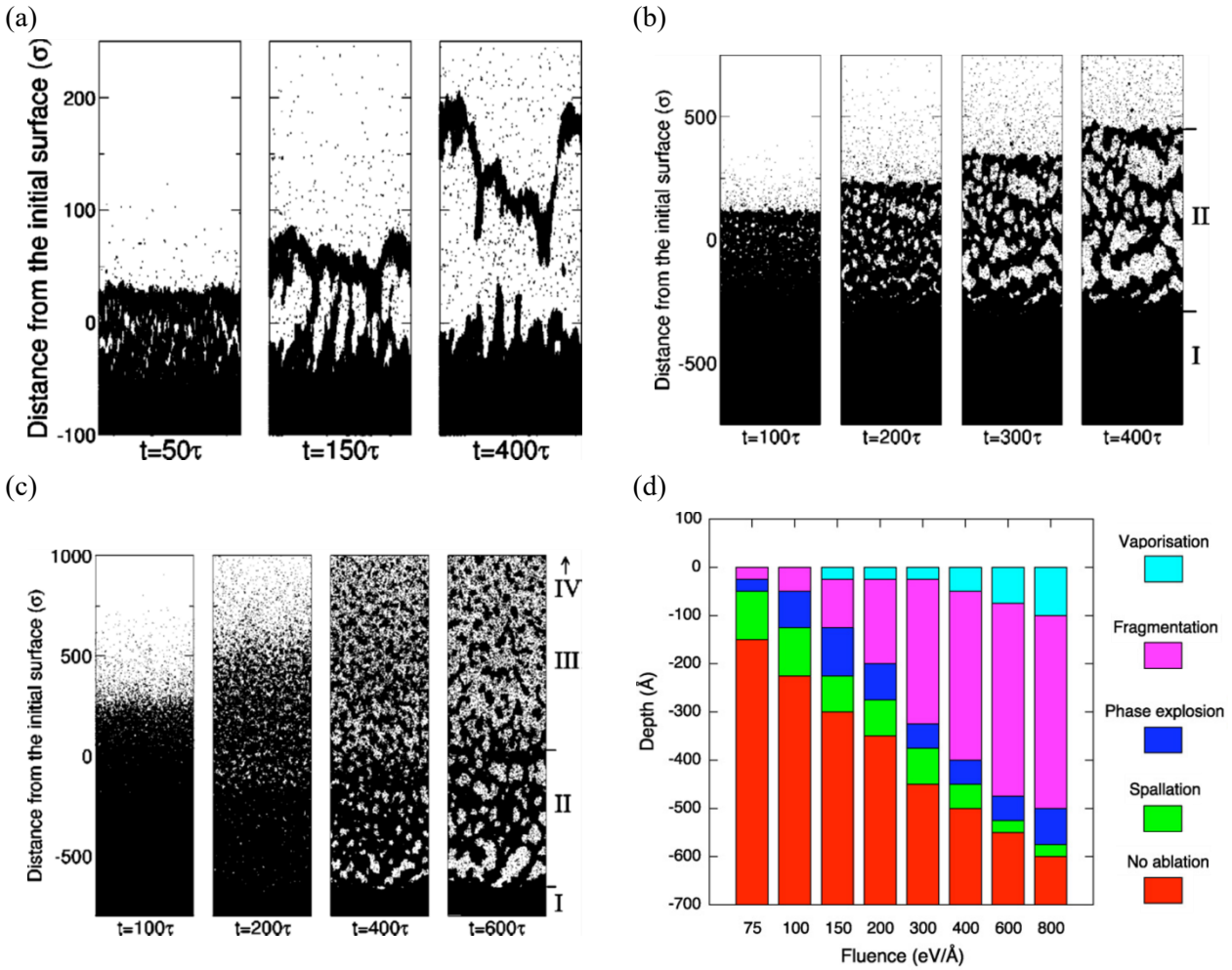


Fig. 1.13 Snapshots of femtosecond laser ablation simulations reveal evolving ablation mechanisms with increasing fluence, (a) spallation, (b) phase explosion, and (c) fragmentation. (d) A graphical representation highlights the divergent ablation mechanisms influenced by injection fluence and depth (τ = 200 fs)[46,48].

1-2-3　レーザ誘起衝撃波

レーザ誘起衝撃波は、レーザアブレーションによって材料が急激に加熱および膨張する過程で生じる衝撃波を指す[54]。材料が固相から気相またはプラズマ状態に変化する際、体積が数千倍に膨張し、周囲に衝撃圧力をもたらす。TTM-MD の研究により、相変態に伴い膨張速度が急速に増大し、衝撃波が大気中やバルク材料に伝搬することが示されている[48]。したがって、Phase explosion 閾値を超えるフルエンスでレーザアブレーションを行うことで、金属内部に衝撃波を伝搬させることが可能である。

レーザ誘起衝撃波は、ナノ秒パルスレーザ照射によっても生成することが可能である。しかしながら、ナノ秒パルスレーザでは、レーザ照射中に気相の拡散や熱拡散が始まり、100 GPa を超える圧力を得るためには、kJ 級の高パルスエネルギーを持つ大規模なレーザ装置が必要である[55]。それに対して、超短パルスレーザでは気相の拡散や熱拡散が開始する前にレーザ照射が終了し、高温高圧のプラズマが形成される。そのため、低エネルギーでも高圧力を得ることが可能である。

1996 年に Evans らによって初めて周波数領域干渉法（FDI: Frequency-domain interferometry）によるフェムト秒パルスレーザ誘起衝撃波の圧力計測が行われ、100-300 GPa の衝撃圧力が負荷されることが推測された[56]。実験で使用されたフェムト秒パルスレーザはパルス幅 120 fs で、レーザ強度は 10^{14} W/cm^2 であった。また、Gahagan らも FDI 計測により、フェムト秒パルスレーザ誘起衝撃波の立ち上がり時間はレーザ照射後 5~6 ps と推測した[57,58]。レーザアブレーションにおいて、数ピコ秒では高温原子の解離プロセスは十分に進んでおらず、電子熱拡散範囲の格子温度の上昇が衝撃波形成の起源であると考えられる。Cuq-Lelandais らは、0.6 PW/cm^2 のフェムト秒パルスレーザ照射時の spallation 観察と数値シミュレーションから、最大衝撃圧力が 150 GPa、衝撃幅が半値全幅で約 50 ps であると算出した[59]。Demaske らは TTM-MD を用いて、超短パルスレーザ誘起衝撃波の伝搬をシミュレーションにより算出した[60]。ニッケルに対して吸収フルエンスが 50 mJ/cm^2 の条件では衝撃圧力が 8 GPa の圧力が生じると算出した。8 GPa の衝撃波では深さ方向に約 800 nm の伝搬中に圧力の低下はほとんど生じない。一方、吸収フルエンスが 1.57 J/cm^2 の条件では 90 GPa の圧力が生じると算出した。Fig. 1.14 に示すように、衝撃圧力は伝搬とともに急激に減衰し、わずか 750 nm の伝搬で 50 GPa 以下に半減する。超短パルスレーザ誘起衝撃波は深さ方向の伝搬に伴う圧力の低下が顕著であり、超短パルスレーザ衝撃加工の影響深さに制約を生じると考えられる。

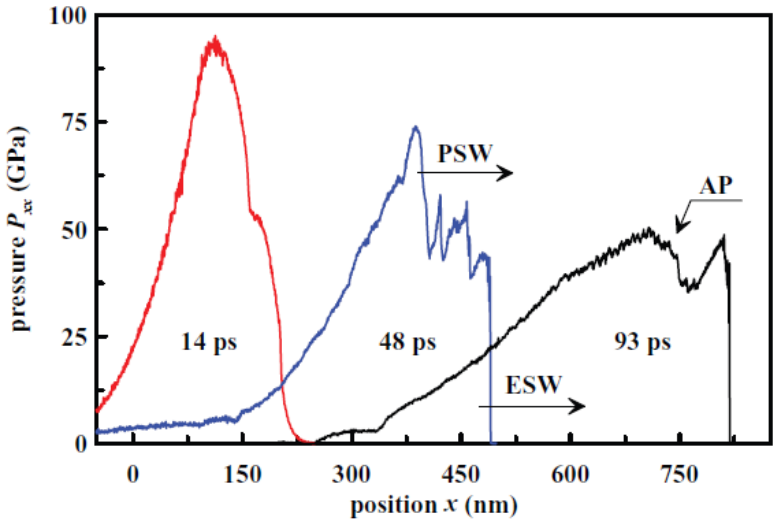


Fig. 1.14 Snapshots showing the development of the ultrashort shock wave from an MD simulation at an absorbed laser fluence of 1.57 J/cm^2. The material is Nickel [60].

このようなレーザ誘起衝撃波は材料の格子を衝撃圧縮する。衝撃波の立ち上がり時間は数ピコ秒スケールであるため、パルス幅がフェムト秒やピコ秒オーダーで 1 パルスの輝度が非常に高く、金属の格子間距離を計測可能な X 線自由電子レーザ（XFEL: X-ray Free electron laser）を用いて、レーザ照射による衝撃圧縮時の格子変形挙動を計測する研究が行われている。レーザ照射から X 線入射までの時間をピコ秒スケールで制御することにより、格子圧縮率の時間変化を計測し、ひずみ速度や最大衝撃圧力、衝撃波の立ち上がり時間を推定することが可能である。Milathianaki らは、パルス幅（半値全幅）170 ps、パルスエネルギー20 mJ、照射ビーム（$1/e^2$）直径 260 μm 条件（推定最大フルエンス 75 J/cm^2、推定最大レーザ強度 4.2×10^{11} W/cm^2）において、衝撃圧縮下の格子変形挙動を計測した。その結果、衝撃波の立ち上がり時間は 50 ps 以内、最大圧力は約 73 GPa、ひずみ速度は 10^9 /s と推定された[61]。松田らは、パルス幅 43 fs、パルスエネルギー60 mJ、照射スポット径 600 μm、推定レーザ強度 4.9×10^{14} W/cm^2（推定フルエンス 21 J/cm^2）の条件下で、衝撃圧縮下の格子変形挙動を計測した[62,63]。その結果、レーザ照射後 50 ps で最も高い 7.15%の弾性ひずみ状態となり、ひずみ速度は 1.8×10^9 /s であった。爆発やガス銃による飛翔体の衝撃圧縮でのひずみ速度は通常 10^7 /s 程度であり、ピコ秒やフェムト秒などの超短パルスレーザ誘起衝撃波のひずみ速度は他の衝撃圧縮法と比較して二桁大きい特徴を持つ。衝撃圧力の算出値が FDI 計測や MD 計算よりも小さな値となる原因は、ガラスによるレーザプラズマの閉じ込めなどの照射時の環境や衝撃パラメータ計測がターゲットの厚みに依存すること、衝撃圧力の算出方法の違いなど多くの問題が考えられるが、数十 GPa から数百 GPa の高い圧力が得られる点で一致する。

フェムト秒パルスレーザ誘起衝撃波の衝撃圧力はアブレーションプルーム計測の研究により、フルエンスと相関することが示されている[64-66]。レーザアブレーション時に大気中へ放出されるサブミリメートル距離のアブレーションプルーム質量速度は、大気中で発生する衝撃波の速度に一致し、ターゲットの膜厚などのサイズ効果が生じないため、様々なフルエンスに対応する衝撃圧力の推定に有効である。Ionin らは、パルス幅（半値全幅）110 fs、0.6-32 J/cm^2 の範囲のフルエンス条件で、アルミニウムターゲットのアブレーション時に生じる衝撃圧力の推定を行った（Fig. 1.15[64]）。アブレーションが生じる条件で衝撃圧力が発生し、フルエンスの増加とともに衝撃圧力が高まることが示された。特に、Phase explosion を生じるフルエンスでは衝撃圧力が顕著に上昇する傾向が示唆される[65]。これらによると、数十 J/cm^2 において 1000 GPa を超える衝撃圧力を得られる可能性があり、高フルエンスレーザ照射時の衝撃圧力を活用した技術の展開に期待できる。

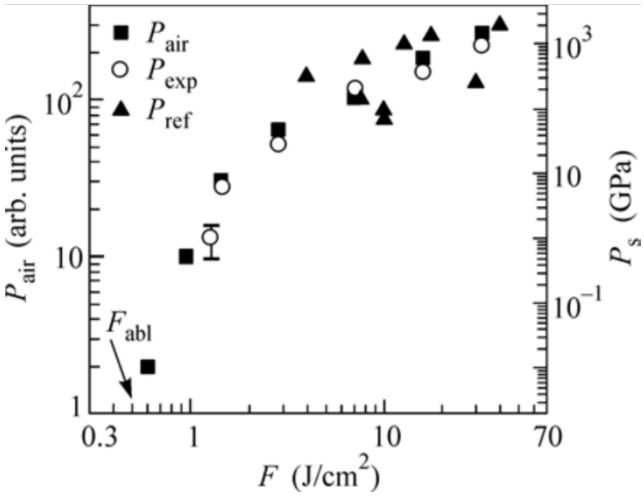


Fig. 1.15 Measured (left axis, closed squares) amplitude of the compression wave and (right axis) initial pressure in the laser jet versus the fluence F using noncontact ultrasonic diagnostic method. Open circles: this work. Closed triangles: references. The arrow indicates the material ablation threshold [64].

1-3　高フルエンス領域における超短パルスレーザ加工

1-3-1　レーザ衝撃加工

レーザ衝撃加工は、レーザ誘起衝撃波を用いて材料を加工する技術である。超短パルスレーザ照射によるアブレーションは、材料に 100 GPa を超える高圧力を与えることができる。この 100 GPa を超える衝撃圧力は材料を塑性変形させるには十分であり、金属材料表層に特徴的な転位組織を形成することができる[67,68]。Fig. 1.16 に超短パルスレーザ照射後の材料組織を透過型電子顕微鏡（TEM: Transmission electron microscope）により観察した結果が示されている。非常に密な転位組織が形成されており、これは転位を生成する金属の塑性変形量が著しく大きいことを表す。このような材料表層への塑性変形により、表層の硬度上昇や耐摩耗性、耐応力腐食割れ性、耐疲労特性などの機能性を付与することが可能である。また、超短パルスレーザ衝撃圧縮を利用することで、シリコンや鉄鋼材料に常圧下で存在しない高圧相を残存できることが確認されており[69,70]、これは新規材料の創製や基礎研究において興味深い。従来の高エネルギーのナノ秒パルスレーザを用いた実験でも 1000 GPa を超える衝撃圧力を得られるが、その際には大きなパルスエネルギーが必要であり、表層の溶融や損傷が激しく、加工への応用は困難である。一方で、高フルエンスでの超短パルスレーザ照射では、その超短パルス性によりわずか数 mJ で十分な衝撃圧力を得ることができ、材料の溶融や損傷を抑えることができる。このため、材料表層の溶融や損傷が小さく、レーザ衝撃加工に活用できる。また、市販されているテーブルトップレーザ装置で実現可能であるため、産業応用においても実用的であると言える。

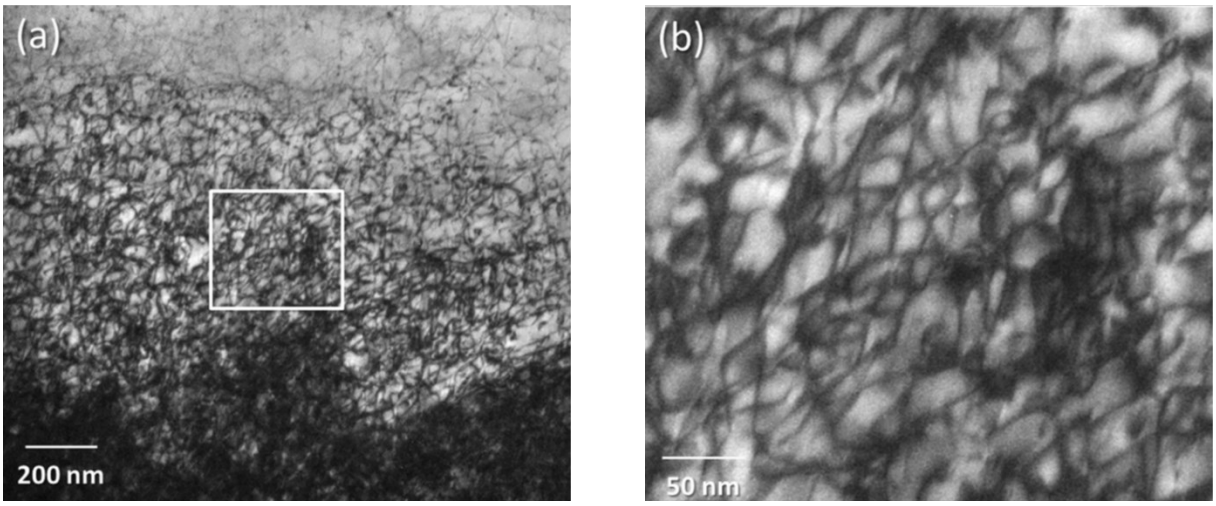


Fig. 1.16 TEM image observed 3 μm from the surface after an ultrashort shock pulse (Laser wavelength: 800 nm, pulse width: 130 fs, pulse energy: 10 mJ, estimated average fluence 130 J/cm^2, in air). (a) General image. (b) Enlarged view showing a uniform dislocation network structure [68].

1-3-2　レーザピーニング

ピーニングは、金属などの材料表面に衝撃力を加えることで表層を塑性変形させ、表面改質を行う手法である。この過程で、加工硬化や圧縮残留応力付与といった効果を得られる。一般に、最大圧縮残留応力値と深い圧縮残留応力付与領域により、材料の疲労特性を改善することができる。ピーニング手法は多岐にわたり、ハンマーピーニング[71]、ショットピーニング（SP: Shot Peening）

[72]、微粒子ショットピーニング（FPSP: Fine Particle Shot Peening）[73]、ウォータージェットピーニング[74]、キャビテーションピーニング[75]、レーザピーニング（LP: Laser Peening, LSP: Laser Shock Peening）[76]などが挙げられる。これらの手法により、部材の疲労特性、耐応力腐食割れ性、耐摩耗性が向上し、製品の品質、安全性の向上、長寿命化に貢献する[77-79]。ピーニング技術は自動車部品（エンジン部品やミッション部品など）、航空機部品（タービンブレードや翼など）、工作機械部品（ギヤやドリルなど）、金属構造物（橋梁や圧力タンクなど）など、幅広い製品に適用されている。

レーザピーニングとは、ナノ秒パルスレーザを用いて水中で行われる表面改質技術である[76]。この手法では、ナノ秒パルスレーザ照射によって発生するプラズマを水で閉じ込め、高い衝撃圧力を得て、材料表層の塑性変形を実現する。ナノ秒パルスレーザ加工は通常、熱影響による材料の劣化が問題となる。このため、材料表層には黒色ペイントや金属薄膜などの犠牲層を施すことが一般的で、表面の溶融や熱影響を抑制する[80]。コーティングの施されていないレーザピーニング（LSPwC: LSP without coating）の場合、最表層の残留応力は引張応力や比較的小さな圧縮応力であり、非常に精密な条件設定が必要である[81-85]。ショットピーニングでは通常、圧縮残留応力の付与深さは 300 μm 程度であり、微粒子ショットピーニングではこの深さは数十 μm 程度である（Fig. 1.17(a)）[73]。一方、ナノ秒パルスレーザピーニングによって付与される圧縮残留応力の深さは、パルスエネルギーに応じて変動し、100 mJ で 1 mm 程度、10 mJ で 200 μm 程度である(Fig. 1.17(c))[85]。これらは圧縮残留応力付与深さが照射径に依存することも関係する[86,87]。さらに、これらの応力付与によって未施工材と比較して疲労寿命が 10 倍以上に延長されることが示されている(Fig. 1.17(b), (d))。特に航空機産業では、その深い領域までの圧縮残留応力付与の信頼性から、100 mJ 程度のレーザピーニングが実用化されている（LSP Technologies Inc.）。

超短パルスレーザを用いて大気中で行うレーザピーニング技術をドライレーザピーニング（DLP: Dry laser peening）と呼ぶ[88,89]。超短パルスレーザは、大気中でも十分な衝撃圧力を生成でき、水などのプラズマ閉じ込め媒質を必要としない。また、短いパルス幅により熱影響を抑制でき、金属表層に犠牲層を施す必要もない。つまり、前処理を必要とせず、大気中で施工可能なドライなレーザピーニングであり、ピーニングの適用範囲を広げる可能性がある。実際に、パルスエネルギーが 600 μJ、1.0 mJ の超短パルスレーザにより、圧縮残留応力の付与深さとして約 100 μm の値が得られている(Fig. 1.17(e))。低応力振幅の場合、未施工材と比較して疲労寿命が 10 倍以上に延長できるが、高応力振幅の場合、あまり伸展が見られない疲労試験結果が得られている(Fig. 1.17(f))。これは亀裂の発生位置が関与しており、低応力振幅の場合、圧縮残留応力により表層の亀裂発生を抑制できるため、表層から約 100 μm 内部から亀裂が生じたのに対して、高応力振幅の場合、表層で亀裂が生じたためであると考えられている。ドライレーザピーニングでより深い領域に圧縮残留応力を付与できれば、他のピーニング手法よりも優れた疲労特性を得られる可能性がある。

このためには、高パルスエネルギーの活用が有効であると考えられる。[88]の研究によれば、ナノ秒パルスレーザピーニングのエネルギー依存性と同様に、高パルスエネルギーほど圧縮残留応力の導入が深いことが示されている。圧縮残留応力付与領域が浅い条件でも表層の強化が十分な場合、疲労特性は改善する場合もあるが、一般的にはより深い付与が良好な疲労特性をもたらすとされている。特に、航空機のタービンブレードなど、粉塵などの外的な損傷を受けやすい部材では、圧縮

付与領域が亀裂進展を抑制するのに役立つため、ピーニング効果を深くまで導入することは意義がある。以上から、1 mJ 以上のパルスエネルギーを使用した超短パルスレーザ衝撃加工は有益であると結論できる。

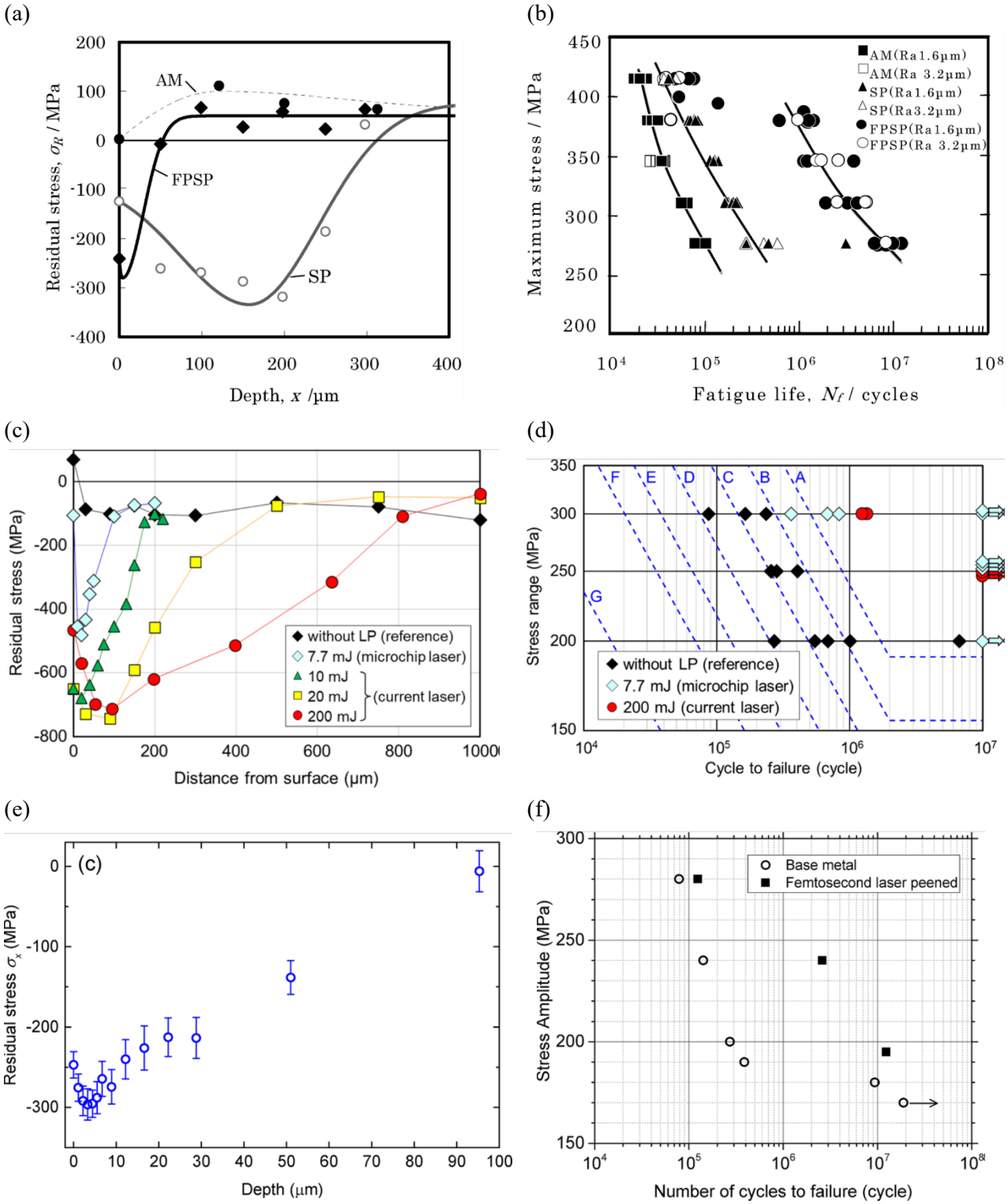


Fig. 1.17 Depth profiles of residual stress and fatigue test results obtained by various peening techniques. (a), (b) SP and FPSP on aluminum alloy (Al7075-T6) [73]. (c), (d) LP of various pulse energies on high tensile steel (HT780) [85]. (e), (f) DLP on aluminum alloy (Al2024) [88].

1-3-3　大気中での高強度超短パルスレーザ加工

ドライレーザピーニングは約 1 mJ の超短パルスレーザを用いたレーザ加工法である。このエネルギーはフルエンスに換算すると、約 10 J/cm^2 のフルエンス領域に該当し、アブレーション閾値よりも二桁大きなフルエンスである。高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工は、レーザ衝撃加工や高効率なアブレーション加工に応用できる。しかしながら、大気中での高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工は一般的に困難とされている。Zhao らは、真空中での超短パルスレーザアブレーション深さがフルエンスに応じて増加するのに対して、大気中でのアブレーション深さには上限が生じることを報告している[90]。Fig. 1.18 には、真空条件下と大気中におけるアブレーション深さのレーザ強度依存性が示されている。Fig. 1.18 内の実験データの引用文献 42,43,44 は、本論文の参考文献 91,92,93 に対応している。レーザ強度が約 3.0×10^{13} W/cm^2 を超えると、真空と大気のアブレーション深さに差が現れることが分かる。この違いは、大気中での初期プラズマ生成や絶縁破壊へのエネルギー消費が大きいこと、またレーザ集光特性の変化や強度クランプ現象が影響しているとされている[94,95]。そのため、高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工においては、レーザと大気の相互作用を無視できないと考えられる。

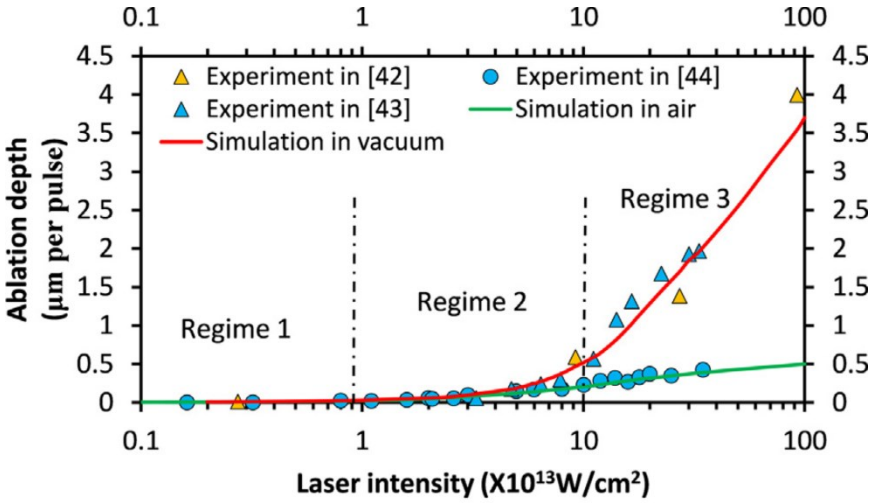


Fig. 1.18 Ablation depth per pulse as the function of laser intensity. Pulse duration of 100 fs, wavelength of 800 nm, target material: aluminum [90].

光と物質は、光電場が物質の持つ荷電粒子を揺り動かし、分極を誘起することで相互作用する。通常、光電場に対して物質の応答は線形分極として扱われるが、強い光電場に対しては応答の非線形性、例えば非線形分極や電離が無視できなくなる。媒質の屈折率や吸収係数は物質の電子密度や分極に依存するため、強い光電場では光伝搬や光吸収過程に特有の現象が生じる。このような強い光電場に対する物質の様々な非線形応答を非線形光学現象と呼ぶ[96-98]。超短パルスレーザの光電場は非常に強力であるため、大気中の超短パルスレーザ集光過程において、レーザと大気の相互作用が重大な影響を及ぼす。

1-3-4　大気中の超短パルスレーザ伝搬に作用する非線形光学現象

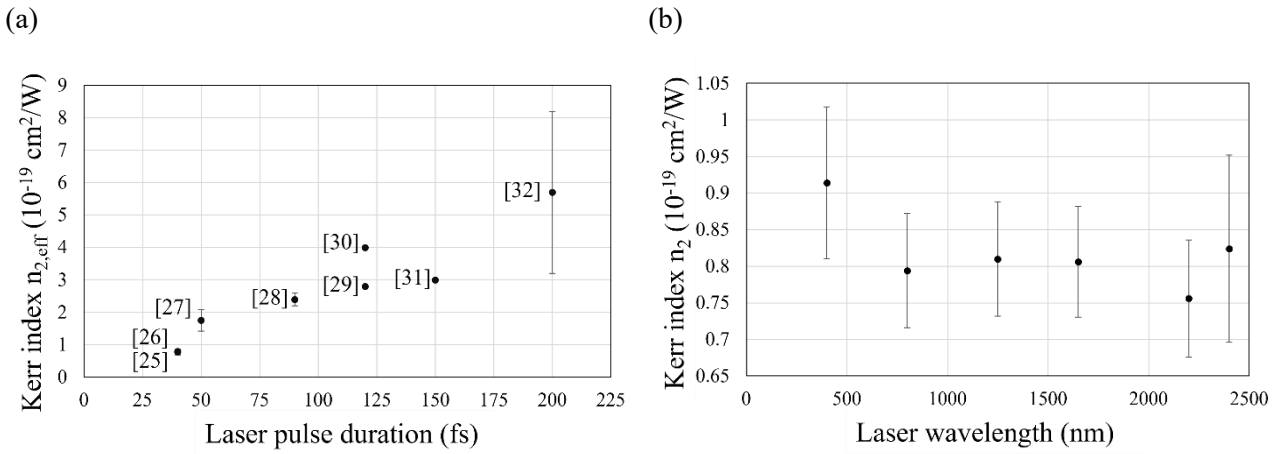
大気中の超短パルスレーザ伝搬に作用する非線形光学現象は主に光カー効果と大気の電離の 2 つに分類される。

I.光カー効果（電気光学カー効果、Optical Kerr effect）：光カー効果は、電場に応じて結晶や液体

の光学的性質が変化する現象である[99]。この効果は、電場の三乗に比例する三次の非線形分極が原因となっており、これを指して三次の非線形光学効果と呼ぶ。物質の屈折率が電場振幅の二乗（レーザ強度）に比例して変化するため、これは二次の電気光学効果とも呼ばれる。この現象は次の式で表される。

$$n^* \approx n_0 + n_2 I \tag{1.9}$$

n_2はカー指数と呼ばれる値を表す。大気のカー指数は通常正の値を持っており、レーザ強度に比例して屈折率が増加することが知られている。光の空間的な強度分布が均一でない場合、空間的に屈折率分布が形成され、これが光の伝搬に影響を及ぼす。大気のカー指数n_2を求める手法は、1990 年代から現代にかけて幅広く研究されており、その中には自己集束の測定、自己位相変調によるスペクトル変化の測定、ポンププローブ法を用いた複屈折による偏光変化の測定など、多くの実験的手法が含まれている[100-109]。これらの実験結果から、レーザ波長が 800 nm の条件で推定されたn_2の値をまとめた結果を Fig. 1.19(a)に示している。実験に用いたレーザのパルス幅に応じて、カー指数n_2の値は増加傾向にあることが明らかである。この増加は次項で説明するラマンカー効果の寄与が原因と考えられている。また、n_2の値はレーザの周波数（または波長）に依存することも報告されており[102]、これを Fig. 1.19(b)に示す。波長がある特定の値よりも短くなると、カー指数が増加する傾向が示されている。このように、光カー効果はレーザ波長、パルス幅、レーザ強度に依存する非線形光学現象であり、超短パルスレーザ伝搬に影響を与える。なお、高次の光カー効果（HOKE: Higher-Order Kerr Effects）についても議論がなされているが[103-123]、超短パルスレーザ伝搬現象においては HOKE の影響は無視でき、二次の光カー効果までの考慮で十分であるとされている。



(a) Pulse duration dependence of Kerr index n_2, laser wavelength: 800 nm [101].

(b) Laser wavelength dependence of Kerr index n_2, pulse duration: 40 fs [102].

Fig. 1.19 Dependence of Kerr index n_2 on laser component.

II. ラマンカー効果（Raman Kerr effect）：ラマンカー効果は、分子の誘導ラマン効果によって屈折率が変動する現象である。光学カー効果は、先述した瞬間的な電子的寄与に加えて、ラマンカー効果による遅延成分が含まれることが知られている[124]。誘導ラマン効果とは、外部の電場の方向

に分子の相互作用エネルギーが整列することによって回転運動が励起される現象である。分子の回転運動の応答には通常 70 fs 程度かかるとされているが、パルス幅がそれよりも短い時間であっても、十分な電場が与えられる場合、ラマンカー効果が影響を及ぼす可能性がある[125]。ラマンカー効果は瞬間的なカー効果（instantaneous Kerr effect）に対して、遅れたカー効果（delayed Kerr effect）とも呼ばれる。パルス幅に対して指数関数的に増加する経験則から、Miguez らは 2017 年にラマンカー効果を考慮した実効的なカー指数$n_{2,eff}$を次のように表すことを提案している[109,126]。

$$n_{2,eff} = n_{2,el} + n_{2,ori}\left\{1 - exp\left(-\frac{\tau}{\tau_0}\right)\right\} \tag{1.10}$$

$n_{2,el}$：瞬間的なカー指数、$n_{2,ori}$：分子によるカー指数、τ_0：固有の応答時間、τ：パルス幅である。これらの値は実験結果から推定され、カー指数とパルス幅の関係を明らかにすることができる。Fig. 1.20 に示すように、レーザ波長 800 nm における窒素や酸素、アルゴンに対する実効的なカー指数$n_{2,eff}$はパルス幅に依存している。なお、原子や一部の分子は球状粒子（例えば、アルゴン）であり、回転運動が起こらないため、カー指数はパルス幅によらず一定である。

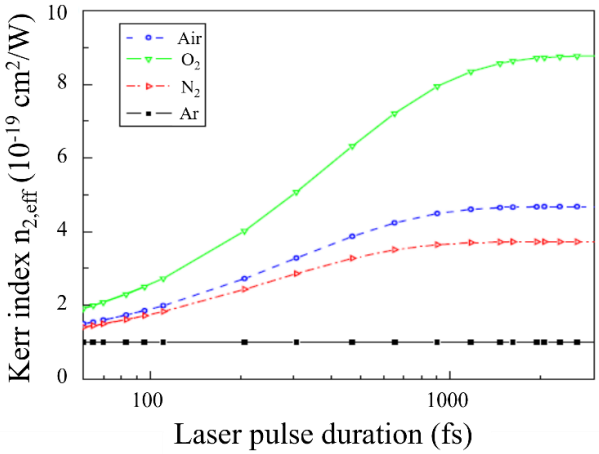


Fig. 1.20 Pulse duration dependence of Kerr index n_2 considering Raman scattering, laser wavelength: 800 nm [109].

III. レーザ電離（Laser ionization）：大気やガラスなどの透明媒質において、ある閾値を超える電場強度が加わることで電離が生じる。次に示す式のように、媒質中の自由電子密度の増加は屈折率を減少するため、レーザ伝搬に影響を及ぼす非線形光学現象として位置づけられる。

$$n = \sqrt{1 - \frac{Ne^2}{\omega^2 \varepsilon_0 m}} \tag{1.11}$$

Nは自由電子密度である。1960 年代に短パルスで高強度のレーザが開発され、それ以来、レーザによる電離（イオン化）の研究が活発に行われた。大気は主に窒素分子と酸素分子から構成され、高いバンドギャップを持つ絶縁体である。紫外領域以外の波長の光子は、光子エネルギーがバンドギャップを超えることができないため、吸収されずに大気中を透過する。しかしながら、電場強度が大きく、光子密度が高い場合、一つの電子が複数の光子を同時に吸収し、バンドギャップを超えて電離することができる。この現象を多光子吸収電離（MPI: Multiphoton Ionization）と呼ぶ[127,128]。さらに、1979 年には光電子のエネルギースペクトルの測定から、特定の閾値を超えるエネルギーの光子を余分に吸収して電離する超閾電離（ATI: Above-Threshold Ionization）と呼ばれる現象も報告さ

れた[129-131]。多光子吸収過程の模式図を Fig. 1.21 に示す。

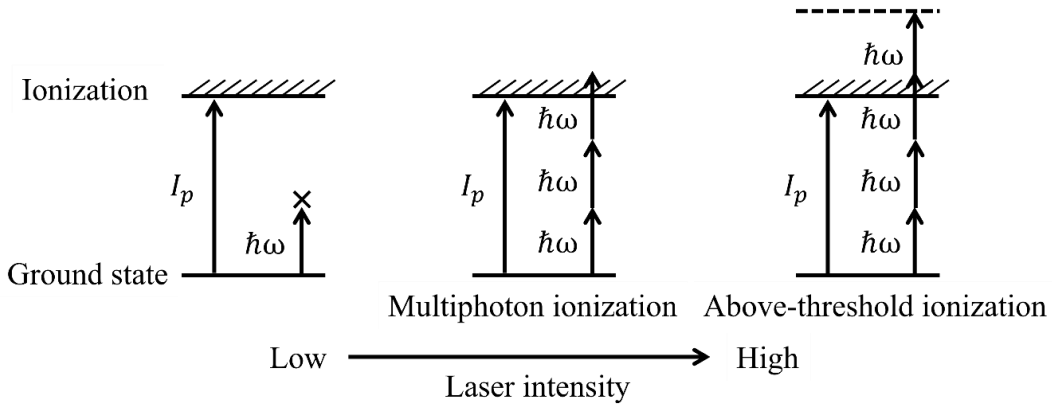


Fig. 1.21 Multiphoton ionization model.

多光子吸収過程の電離率はN乗則を用いて次のように表すことができる。

$$N = \left[\frac{I_p}{\hbar\omega_0}\right] + 1 \tag{1.12}$$

$$W_{MPI}(I) = \sigma_N \left(\frac{I}{\hbar\omega_0}\right)^N \tag{1.13}$$

N：電離に必要な最小光子数（数学記号[a]は a より小さい自然数を表す。）、I_p：第一イオン化エネルギー、$\hbar\omega_0$：光子エネルギー、I：レーザ強度、$W_{MPI}(I)$：レーザ強度に依存した電離確率、σ_N：光子数Nに対応する電離断面積を表す。電離断面積は実験や理論計算によって求められる[132,133]。光子数の増加に伴い電離断面積は急激に減少するため、超閾電離は多光子吸収電離に比べて小さい。N乗則を用いた記述は、多光子吸収電離が支配的なレーザ強度領域でのみ有効である。強いレーザ場による電離では、ポンデロモーティブエネルギーの考慮が不可欠である。ポンデロモーティブエネルギーとは、空間的に振幅が変化する電磁波中におかれた荷電粒子が持つポテンシャルエネルギーを指す。レーザによる電離後、電子はレーザ場中に存在するため、実効的な電離ポテンシャルは第一イオン化エネルギーI_pとポンデロモーティブエネルギーU_pの和となる。

$$N = \left[\frac{I_p + U_p}{\hbar\omega_0}\right] + 1 \tag{1.14}$$

電子のポンデロモーティブエネルギーは次のように表される。

$$U_p(eV) = \frac{e^2E^2}{4m\omega^2} = 9.337 \times 10^{-14} I(W/cm^2)\lambda^2(\mu m) \tag{1.15}$$

U_p：ポンデロモーティブエネルギー、e：電気素量、m：電子質量、E：レーザ電場振幅、ω：レーザの角周波数を表す。レーザ強度が 10^{14} W/cm^2 程度に高まると、電子のポンデロモーティブエネルギーは第一イオン化エネルギーと同程度の大きさとなり、多光子吸収電離を困難にする。

レーザ強度が 10^{14} W/cm^2 に達すると、レーザ電場の直接的な作用によりトンネル効果を引き起こして電離するトンネル電離（TI: Tunneling Ionization）が生じる[134]。この状態では、電子が獲得す

るポンデロモーティブエネルギーが第一イオン化エネルギーと同程度になる。したがって、原子に束縛されている電子とレーザ電場にとらわれている電子との間には、ポテンシャルの大きな差が生じない。その結果、Fig. 1.22 に示すように、原子に束縛されている電子は強いレーザ電場の影響でレーザ電場内へ移動できるようになる。さらに、レーザ強度が 10^{15} W/cm^2 程度に達すると、原子核ポテンシャルを超えるエネルギーレベルになり、障壁抑制イオン化（BSI: Barrier Suppression Ionization）として知られる現象が発生する[135,136]。

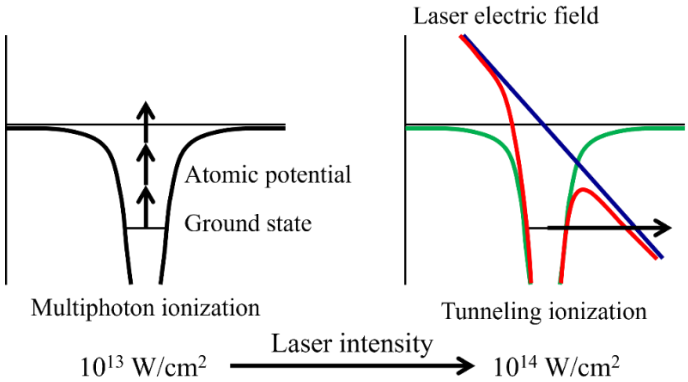


Fig. 1.22 Two processes of photoionization. Multiphoton ionization, Tunneling ionization.

多光子吸収電離とトンネル電離は確率的に発生する現象であり、これらを明確に区別することは難しい。1965 年、Keldysh は、レーザ強度に応じてどちらの電離メカニズムが支配的となるかを示す理論を提唱した[137]。トンネル効果が起こるには、電子がバリアを通過するのに必要な時間が光の電場変化の時間スケールよりも十分に大きい必要がある。

$$v_e = \sqrt{\frac{2I_p}{m}} \tag{1.16}$$

$$\frac{I_p}{eE_0} \div v_e < \frac{1}{2\omega} \tag{1.17}$$

v_eはイオン化エネルギーを持つ電子の速度を表す。(1.17)式の左辺は電場が加わった際のバリアの厚さを電子の速度で割ったものであり、これは電子がバリアを通過するのに必要な時間を示す。右辺は電場の変化時間を表す。これらの比率を取ると、次のように表される。

$$\gamma = \frac{\frac{I_p}{eE_0} \div \sqrt{\frac{2I_p}{m}}}{\frac{1}{2\omega}} = \omega\frac{\sqrt{2mI_p}}{eE_0} \tag{1.18}$$

γは Keldysh パラメータとして知られる。$\gamma \ll 1$の場合、バリアを通過するのに必要な時間に対して電場の変化が十分に遅いため、トンネル電離が支配的となる。逆に、$\gamma \gg 1$の場合、電場の変化がバリアを通過するのに必要な時間よりも短いため、トンネル電離は起こらず、多光子吸収電離が支配的となる。$\gamma \approx 1$の場合、多光子吸収電離とトンネル電離の両方が生じる可能性がある。詳細な数式は第 2 章に譲るが、Keldysh は水素原子の電離率$W_{Keldysh}$を計算する式を導出し、レーザ電離論の基盤を築いた。また、1966 年には Perelomov、Popov、Terent'ev らによって新しい電離モデルである PPT モデルが提案された[138-140]。PPT モデルでは多電子原子の電離率を計算する際に、取り去

る電子の軌道を考慮することで可能となった。さらに、PPT モデルでは、酸素分子や窒素分子の電離率を求めるために、有効核電荷を設定することができる[141]。この修正を加えたモデルを修正 PPT モデルと呼ぶ。また、1986 年には Ammosove、Delone、Kraînov によってトンネル電離率を記述する ADK モデルが提案された[136,142]。ADK モデルは、Keldysh パラメータ$\gamma \ll 0.5$の場合に適用でき、高レーザ強度領域において実験結果と定量的に一致することが示された。その後、ADK モデルは PPT モデルにおいてレーザ強度の高い極限を取った場合と等価であることが判明した。PPT モデル、修正 PPT モデル、ADK モデルの電離率計算結果と実験結果から導出される、酸素分子と窒素分子の電離率の比較を Fig. 1.23 に示す。修正 PPT モデルの電離率は、10^{12} W/cm^2 程度の低レーザ強度から 10^{15} W/cm^2 程度の高レーザ強度の広い範囲で実験結果と非常に良く一致している。したがって、大気中の超短パルスレーザ伝搬計算においては、修正 PPT モデルが適切である。

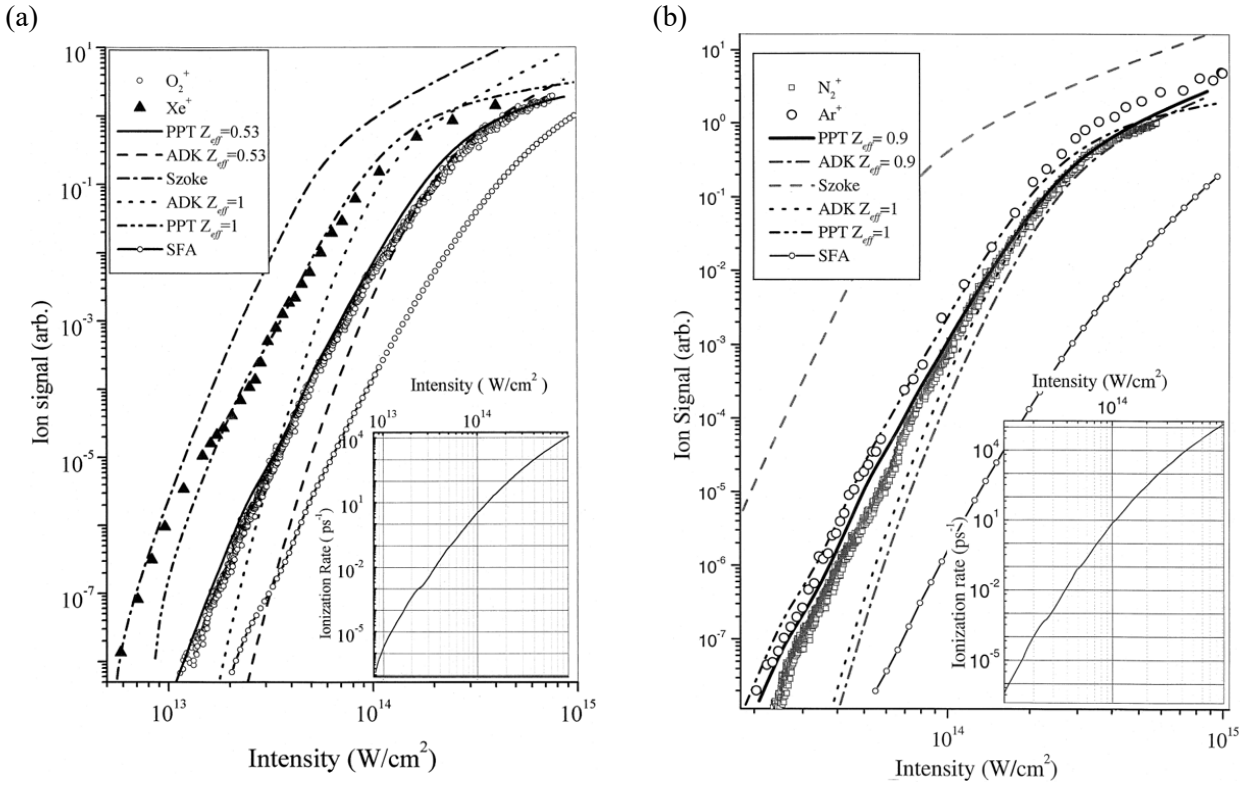


Fig. 1. 23 Comparison of calculated and experimental results with and without an effective residual ion charge for the PPT model, ADK model, modified PPT model. (a) Oxygen, (b) Nitrogen [141].

IV. 衝突電離（Impact ionization）：レーザ場による直接的な電離に加えて、高エネルギーを持つ電子が中性粒子と衝突することで電離が生じる現象を衝突電離と呼ぶ。衝突電離では、まずレーザ電離によって放出された自由電子が逆制動放射により運動エネルギーを蓄積し、イオン化エネルギー以上の運動エネルギーを持った状態で中性粒子と衝突する必要がある。そのため、衝突電離が生じるまでには数百フェムト秒程度の遅延があり、フェムト秒パルスレーザにおける衝突電離の影響は小さくなる[143]。一方、パルス幅がピコ秒程度のパルスレーザでは衝突電離の影響を考慮する必要があり、これは適切な電離モデルを選定する必要がある[144]。レーザ伝搬計算においては、衝突電離量を計算する方法として、電子密度のみを用いて衝突電離量を近似的に計算する方法[124]や、電子温度と電子密度を用いてより精密に計算する方法[144]、または電子エネルギー分布と衝突電離

断面積の関係性から精密に計算する方法[143,145]などが存在する。これらの計算方法は計算コストに違いがあるが、衝突電離を適切に考慮するためには、具体的なシナリオに応じて適切な衝突電離モデルを採用することが望ましい。

衝突電離断面積は、電子エネルギーを調整可能な電子ビームを用いて実験的に測定されている。この結果を Fig. 1.24 に示す。電子エネルギーが分子の第一イオン化エネルギーを超えていない場合、衝突電離断面積はゼロである。酸素分子の第一イオン化エネルギーは 12.07 eV であり、窒素分子の第一イオン化エネルギーは 15.58 eV である。これを超える電子エネルギーから衝突電離断面積は増加し始め、電子エネルギーが約 100 eV 程度の範囲でピークに達し、その後緩やかに減少する。なお、イオン化エネルギーが高い窒素分子の方が、酸素分子よりも大きな衝突電離断面積を示す。ただし、この実験は電子ビームを用いて電子エネルギーを制御し、分子に照射する方法であるため、衝突電離時にはレーザ場が存在しない状況で行われる。実際の高強度レーザ場下では、原子や分子が光ドレスト状態（light-dressed states）と呼ばれる状態にあることが知られている。これは光によって電子密度分布が大きく影響を受け、原子や分子の性質が変化する状態である[146]。その結果、高強度レーザ場下では衝突電離断面積も変動することが分かっており、2021 年の研究ではアルゴンの衝突電離断面積が平常時の約 2 倍になることが計測により明らかにされている[147]。ただし、酸素分子や窒素分子に対して光ドレスト状態を考慮した衝突電離断面積の知見はまだ得られておらず、大気中でのレーザ伝搬計算においては衝突電離の記述には不確かさが残ることに留意が必要である。

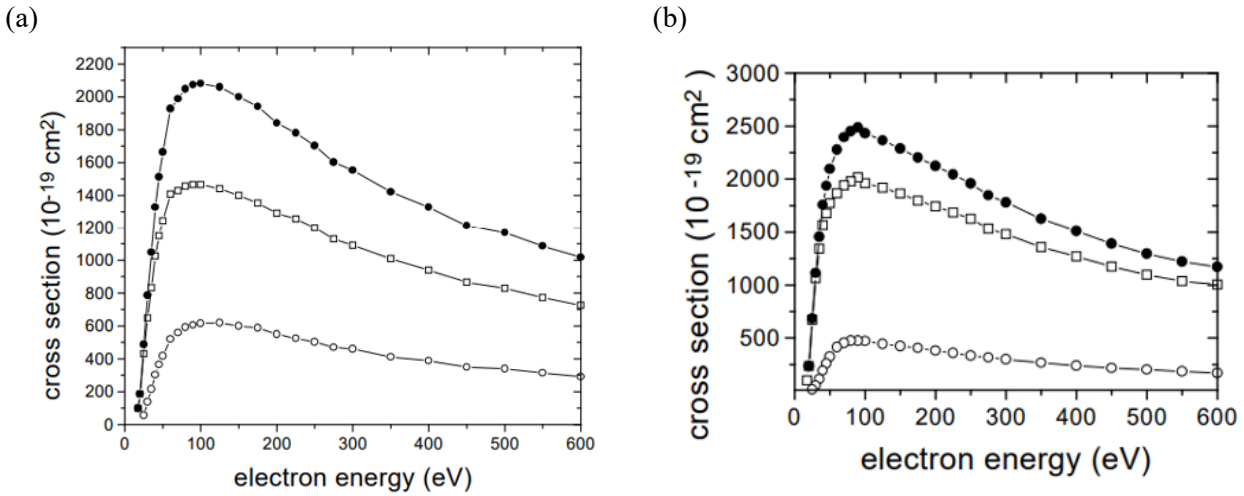
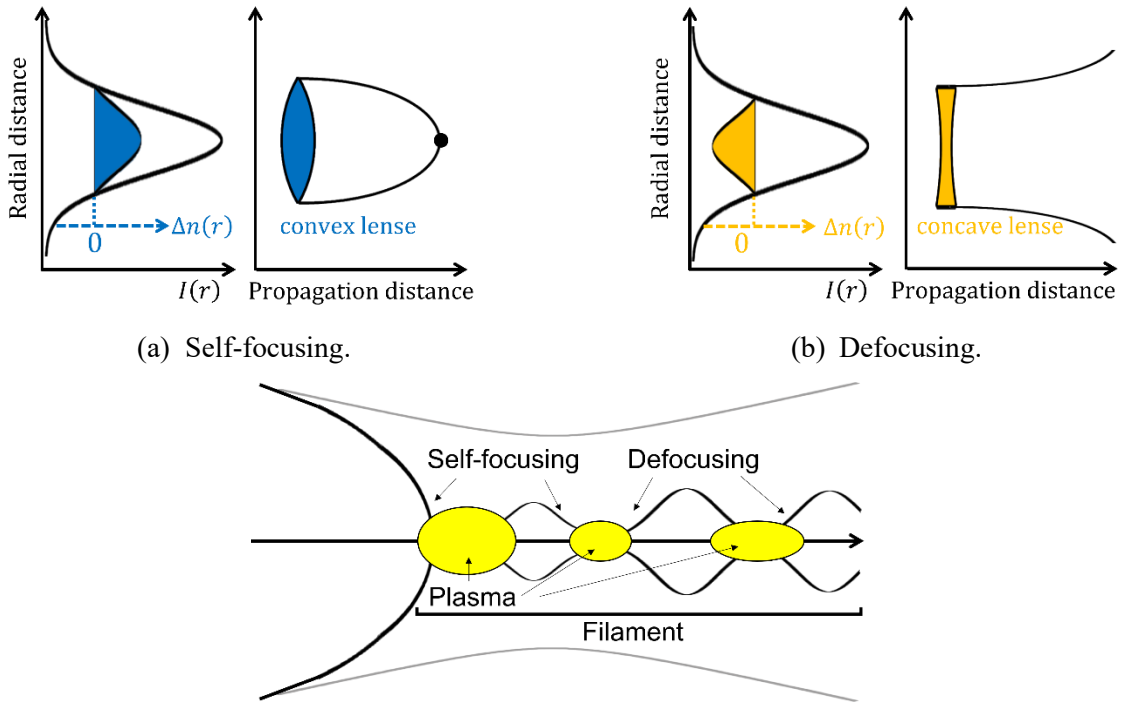


Fig. 1. 24 Measurements of impact ionization cross sections as a function of electron energy. (a) Oxygen, total cross section (-•-), O_2^+ cross section (-□-), O^++O cross section (-○-), (b) Nitrogen, total cross section (-•-), N_2^+ cross section (-□-), N^++N cross section (-○-) [145].

これまで述べたように、超短パルスレーザの伝搬には多くの非線形光学現象が関与し、特異な伝搬現象が観察される。その中で代表的な現象がレーザフィラメンテーションである。Fig. 1.25 にレーザフィラメンテーションの模式図を示す。レーザフィラメンテーションは、高強度レーザが集光する際に、通常のレイリー長を大きく超えて集光状態が持続する現象である[148-150]。これは光カー効果による自己集束(Self-focusing)により、回折によるレーザ発散を抑制することで生じる[151]。典型的なレーザの強度分布はガウシアン分布であり、大気などの媒質中ではカー指数が正であるか

ら光カー効果によって光軸中心の屈折率が高まる。これにより、光軸中心の光路長が周囲よりも長くなり、集光が促進される（凸レンズ効果）。自己集束によって光軸中心のレーザ強度がさらに増加し、凸レンズ効果が強化されるため、光は急激に集束する。ただし、実際のレーザフィラメンテーションでは、自己集束に対抗する効果は回折だけでなく、レーザ生成プラズマによる発散も重要である。これをプラズマデフォーカシング(plasma defocusing)と呼ぶ。レーザ集光に伴い多光子吸収電離やトンネル電離が生じ、光軸中心で電子密度が増加し、光軸中心の屈折率が低下する。これにより、光軸中心の光路長が周囲よりも短くなり、発散に寄与する（凹レンズ効果）。自己集束によってレーザ強度が電離閾値に到達し、プラズマ生成によって発散が生じ、これらのプロセスが繰り返されることで、超短パルスレーザは長距離にわたって伝搬する。



(a) Self-focusing.　　(b) Defocusing.

(c) Filamentation

Fig. 1.25 Schematic representation of the focusing-defocusing cycles undergone by the intense core of the beam. The solid curves indicate the diameter of the intense core. The filamentation length is the distance covered by these cycles [124].

伝搬過程で大気の電離にエネルギーを損失し、自己集束に必要なレーザパワーを得られなくなることで、レーザフィラメンテーションは停止する。レーザフィラメンテーションによる到達レーザ強度は最大で約 5.0×10^{13} W/cm^2 である。自己集束による集光では、大気の電離による発散作用が働き、一定の値以上のレーザ強度には上昇しない。この現象は Intensity clamping として知られている[149,152,153]。Intensity clamping によるレーザ強度の上限は以下の式で表現される[154]。

$$I_{max} = \frac{t_p \rho_0 W(I_{max})}{2\rho_c n_0 n_2} \tag{1.19}$$

ここで、t_p：レーザパルス幅、ρ_0：大気の初期中性粒子密度、$W(I)$：レーザ強度Iの電離率、ρ_c：臨

界プラズマ密度、n_0：線形屈折率、n_2：カー指数である。2000 年代以降、レーザフィラメンテーションのシミュレーション研究が進展してきた。ガウシアンレーザの伝搬方程式を出発点とし、光カー効果や大気の電離といった非線形光学現象を考慮した計算手法が構築されている[124,125,154-156]。これによる解析結果と実験結果との整合性が良好であることが確認されており[157-162]、超短パルスレーザ伝搬現象はシミュレーションにより高精度で計算可能である。高強度で高フルエンスの超短パルスレーザ加工では、このようなレーザ集光過程の変化を考慮する必要がある。

1-4　本研究の意義と目的

超短パルスレーザ加工による生産性の向上と付加価値の向上は、次世代のものづくり産業に貢献する。近年、ものづくりの分野では、サイバーフィジカルシステム（CPS: Cyber Physical System）を活用した生産性向上に取り組まれている。超短パルスレーザ加工分野においても、レーザ加工の学理や機械学習に基づく CPS 型レーザ加工の実現に向けた研究が進められている[163,164]。適切な加工パラメータの提案と機械的な制御の実現により、エネルギー効率、時間効率、加工効率に優れた超短パルスレーザ加工が実現できる。

Fig. 1.26 に示すように、超短パルスレーザ加工はそのフルエンスに応じて多様な加工方法に活用される。フルエンスが約 0.01 J/cm^2 から 0.1 J/cm^2 の低フルエンス領域では、LIPSS やナノアブレーション加工が行われる。一方、0.1 J/cm^2 から数 J/cm^2 のフルエンス領域では穴あけや切断加工が行われる。さらに、数 J/cm^2 以上の高フルエンス領域ではレーザ誘起衝撃加工が展開され、ピーニングなどの表面改質技術に活用される。低フルエンス領域での超短パルスレーザ加工の結果は、様々な材料について実験的に十分に調査されている。また、アブレーションシミュレーションには二温度モデルや分子動力学法が用いられ、また機械学習による加工結果を予測する研究も行われている。

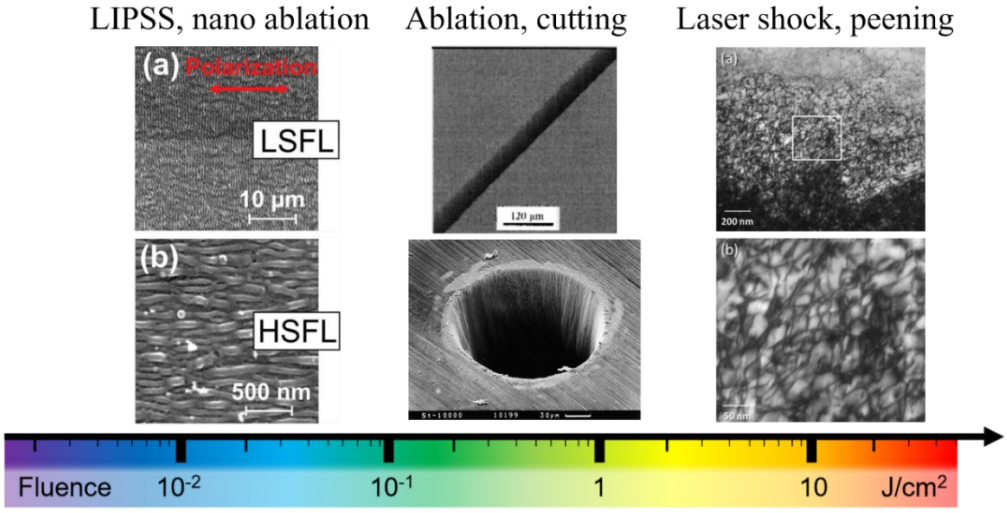


Fig. 1.26 Schematic diagram of fluence region for each ultrashort pulse laser processing method.

一方、高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工分野では、一部の金属に対するアブレーションやピーニング加工が実験的に調査されているが、これに関するシミュレーションや機械学習による評価や予測はまだ行われていない。また、加工に適したレーザパラメータの設定も不透明である。これは、高フルエンスの超短パルスレーザ衝撃加工において、レーザパラメータの設定から加工結

果に至るまでに多くの物理現象が関与するためである。

高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工における物理現象の順序を Fig. 1.27 に示す。レーザパラメータの設定から始まり、まず大気の非線形光学現象の影響を受け、レーザ集光特性が変化する。次に高フルエンスのアブレーション現象が起こり、アブレーション時の衝撃波が生成される。この衝撃波が材料の塑性変形を起こし、衝撃加工が達成される。CPS 型レーザ加工への実現に向けては、これらの物理現象を理解し、加工の学理を解明することが非常に重要である。

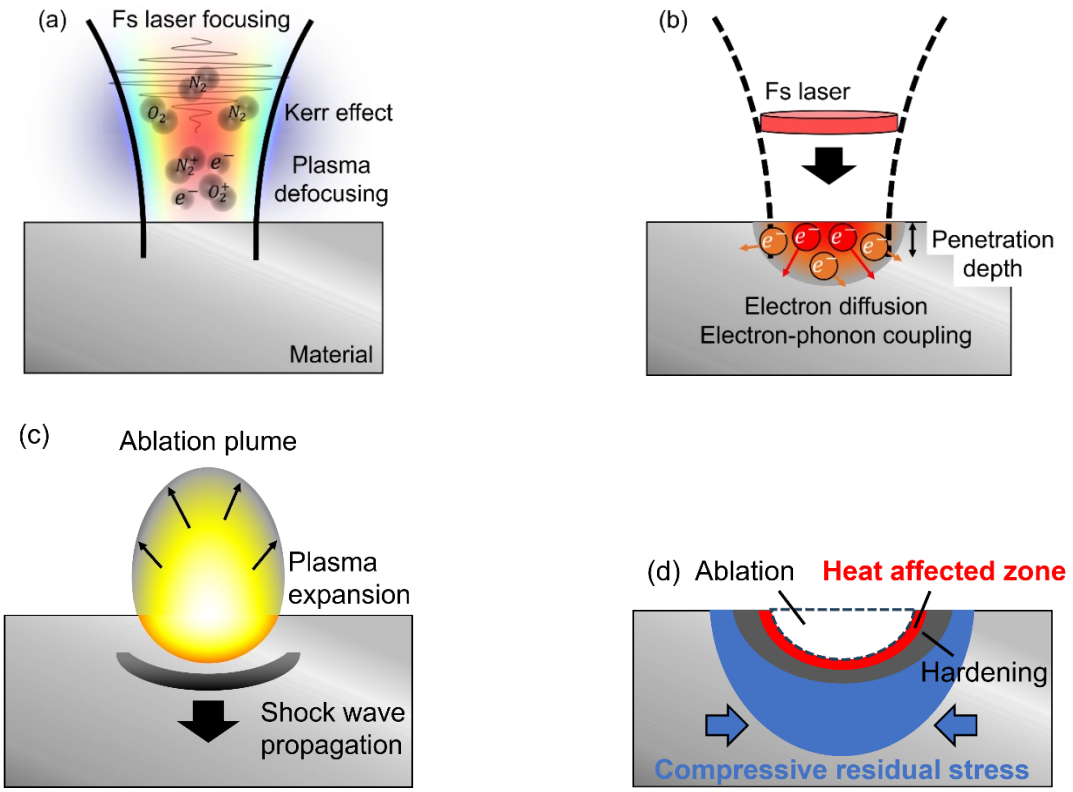


Fig. 1.27 Schematic diagram showing the sequence of physical phenomena in ultrashort pulse laser processing. (a) nonlinear laser propagation process, (b) laser absorption, heating process. (c) Ablation, shock wave propagation process. (d) Shock-affected and heat-affected zones after ablation.

超短パルスレーザ加工の駆動力は、超短パルスレーザ照射である。レーザのフルエンスに応じてアブレーション深さや衝撃圧力が変化するため、高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工においては、レーザ集光特性の理解が極めて重要である。しかし、高フルエンスかつ高強度の超短パルスレーザは、レーザ検出用のカメラやプロファイラを破壊してしまうため、直接観察することは不可能である。それゆえに、大気の非線形光学現象を考慮したレーザの非線形伝搬シミュレーションは、それらの理解を深める有効な方法の一つである。

超短パルスレーザの非線形伝搬シミュレーションは、主にレーザフィラメンテーションの分野で広く行われている。レーザフィラメンテーションは、焦点距離がメートルオーダーの伝搬現象であり、基本的には開口数（NA: Numerical aperture, NA= w_o/f、w_o：ビーム半径、f：焦点距離）は 0.01 未満である。しかし、レーザ加工分野では一般的に NA が 0.01 から 0.3 程度の範囲にあり、これは一般的なレーザフィラメンテーション分野の現象とは異なる。近年、加工条件に近い NA 条件での研究もいくつか報告されており、これらの先行研究のレーザパラメータと集光条件を Table 2 に示

す[165-169]。文献[165,166]の研究では、高 NA 条件において典型的な Intensity clamping の強度を超えて最大レーザ強度が高まることが示された。文献[167,168]の研究では、パルス幅を伸ばすことで最集光時のフルエンスが増加することが示された。文献[169]の研究では、高 NA 条件において低パルスエネルギーでも非線形性が顕著となることが示された。これらの文献では主に大気プラズマの生成に着目した実験が行われており、レーザ集光時の連続的なフルエンス分布の評価や加工への応用は行われていない。

Table 2 Laser parameters of previous studies of ultrashort pulse laser propagation simulation.

Ref.	Wavelength	Pulse width	Pulse energy	Beam radius	Focal length	NA×10^3
[165]	800 nm	50 fs	0.02~4.0 mJ	4.2 mm	100~3800 mm	1.1~42
[166]	806 nm	45 fs	1.0, 4.0 mJ	15 mm	273,136,91 mm	55,110,165
[167]	800 nm	100 fs, 1 ps	0.1~1.2 mJ	13~20 mm	646 mm	23
[168]	1053 nm	0.5~10 ps	0.04~9.0 J	45 mm	3 m	15
[169]	744 nm	100 fs	0.15~2.0 mJ	1.5, 4.0 mm	39.5 mm~2.5 m	0.6~38

超短パルスレーザ加工における集光特性変化の影響については、実験に基づいた報告はいくつか存在する[90-95]。ただし、数値シミュレーションと実験結果の比較を行った研究は限られている[170-173]。これらの先行研究のレーザパラメータと集光条件を Table 3 に示す。文献[170-172]の研究では、非線形伝搬計算で得られたフルエンス分布と集光時のアブレーション形状とを比較し、定性的な一致を報告している。ただし、これらの研究ではパルスエネルギーやパルス幅、NA の条件がそれぞれ単一である。文献[173]の研究では、パルスエネルギーが 2 から 34 μJ の範囲で、非線形伝搬計算によって得られた焦点位置でのフルエンス分布とアブレーション形状を比較し、定量的な一致を示している。ただし、パルスエネルギーが小さく、最大フルエンスは約 6 J/cm^2 となっており、レーザ衝撃加工への応用には制約があると言える。

Table 3 Laser parameters of previous studies of ultrashort pulse laser processing and numerical simulation.

Ref.	Wavelength	Pulse width	Pulse energy	Beam radius	Focal length	NA×10^3
[170]	800 nm	200 fs	1 mJ	2 mm	75 mm	27
[171]	775 nm	150 fs	0.1 mJ	4.83 mm	21 mm	23
[172]	775 nm	150 fs	0.2 mJ	4.83 mm	21 mm	23
[173]	800 nm	43 fs	2~34 μJ	1.5 mm	75 mm	20

これらの先行研究により、レーザパラメータに応じて大気中の超短パルスレーザ集光特性が変化し、加工に影響を及ぼすことは明らかである。しかし、ミリジュール級の高パルスエネルギーや高フルエンス領域における集光特性やそのレーザパラメータへの依存性、および衝撃加工への影響は未解明である。特に、高フルエンス領域では光軸方向のレーザ照射位置制御が重要であるため、焦点位置だけでなく焦点位置近傍での連続的なフルエンス分布とその加工結果について、実験的および計算的な評価が必要である[95]。当研究グループの他にも高フルエンス領域の超短パルスレーザ衝撃加工の報告例はあるが、材料表層への圧縮残留応力の付与や硬度上昇は十分でないという課題

がある[174-176]。これらは、高フルエンス領域特有のレーザ照射位置の制御が適切でないことが原因と考えられる。したがって、レーザ集光特性の数値シミュレーションを通じて、高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工の理論的背景を解明し、レーザパラメータの最適化や照射位置の制御に関する統一的な知見を提供することには大きな研究意義がある。

そこで、本研究では、ミリジュール級の高パルスエネルギーおよび数 J/cm^2 から 100 J/cm^2 程度の高フルエンス領域における超短パルスレーザ集光特性を実験的および計算的に詳細に調査し、その物理現象の解明を目的とする。レーザ集光特性は主にパルスエネルギーやパルス幅、開口数といった重要なパラメータに依存するため、各パラメータ変化に応じた非線形光学現象の影響を明らかにする。これにより、最大レーザ強度や最大フルエンス、レーザ集光位置の変化を網羅的に評価する。

また、高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工の一種であるドライレーザピーニングを実施し、集光特性変化を含むレーザパラメータの影響を詳細に調査する。これにより、適切なレーザパラメータと照射位置制御の重要性を明らかにし、高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工の基礎を構築する。本研究は、レーザ衝撃加工の基礎を確立し、CPS 型レーザ加工の実現に貢献する。

1-5　論文構成

本論文の構成を Fig. 1.27 に示す。本論文は 7 つの章で構成されている。第 1 章（本章）では、超短パルスレーザ加工の基本的な物理現象とその実用化、そして高フルエンス領域での超短パルスレーザ衝撃加工に関するこれまでの研究結果について説明した。また、高フルエンス領域での超短パルスレーザの集光特性変化に焦点を当て、大気の非線形光学現象の影響について説明した。最後に、これらの背景に基づいて、本研究の意義と目的を明示した。

第 2 章では、超短パルスレーザ加工に関連するレーザ伝搬現象について詳細に説明した。基本的なレーザの線形伝搬理論を説明した後、光カー効果や大気の電離などの大気の非線形光学現象を考慮した超短パルスレーザ伝搬の計算方法について説明した。

第 3 章では、大気の電離閾値を超える強度、フルエンス領域の超短パルスレーザ加工におけるフェムト秒からピコ秒領域のパルス幅依存性に着目し、アブレーションやピーニング加工に及ぼすパルス幅の影響を実験的に調査した。

第 4 章では、大気の電離閾値を超える強度、フルエンス領域の超短パルスレーザ集光特性におけるフェムト秒からピコ秒領域のパルス幅依存性に着目し、数値シミュレーションを用いてレーザ集光特性に及ぼす大気の非線形光学現象の影響とそのメカニズムを調査した。

第 5 章では、大気の電離閾値を超える強度、フルエンス領域の超短パルスレーザ加工におけるサブ mJ から数 mJ のパルスエネルギー依存性に着目し、アブレーションやピーニング加工に及ぼすパルスエネルギーの影響を実験的に調査した。また、数値シミュレーションを用いてレーザ集光特性変化を調査した。

第 6 章では、第 3 章から第 5 章までに得られた知見を基に、高フルエンス条件を照射可能な高開口数条件でのレーザ集光特性を調査した。また、レーザ衝撃加工に及ぼすフルエンスやアブレーション径の影響について考察し、高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工を最適化するためのレーザパラメータや集光条件について結論を導いた。

最後に、第 7 章において本研究で得られた成果を総括した。

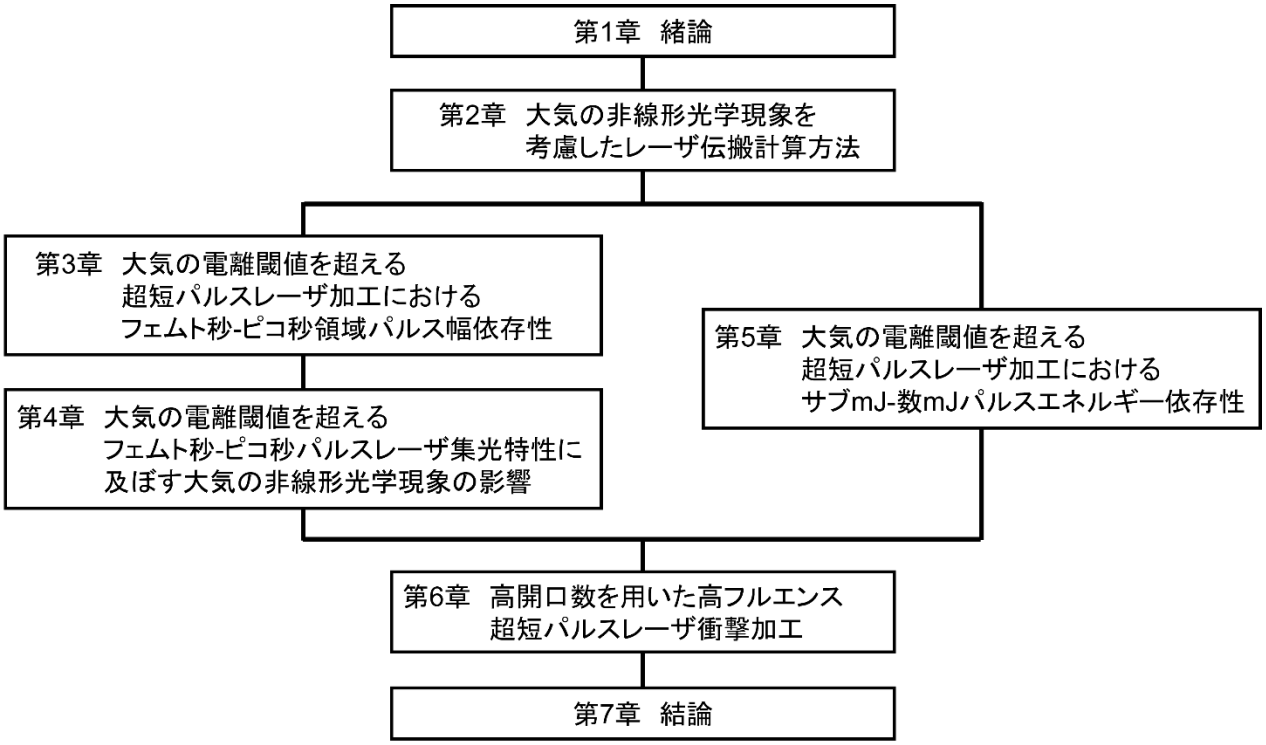


Fig. 1.27 Flow chart of this study.

参考文献

[1] A. L. Schawlow and C. H. Townes, “Infrared and optical masers”, Phys. Rev., Vol. 112, No. 6, pp. 1940-1949 (1958).

[2] T. Maiman, “Stimulated optical radiation in ruby”, Nature, Vol. 187, No. 4736, pp. 493-494 (1960).

[3] F. Krausz and M. Ivanov, “Attosecond physics”, Rev. Mod. Phys., Vol. 81, No. 163, pp. 163-234 (2009).

[4] D. Strickland and G. Mourou, “Compression of amplified chirped optical pulses”, Opt. Commun., Vol. 56, No. 3, pp. 219-221 (1985).

[5] B. N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. von. Alvensleben, and A. Tünnermann, “Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids”, Appl. Phys. A, Vol. 63, No. 109, pp. 109-115 (1996).

[6] S. Nolte, C. Momma, H. Jacobs, A. Tünnerman, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen, and H. Welling, “Ablation of metals by ultrashort laser pulses”, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 14, No. 10, pp. 2716-2722 (1997).

[7] A. Ostendorf, G. Kamlage, U. Klug, F. Korte, and B. N. Chichkov, “Femtosecond versus picosecond laser ablation”, Proc. of SPIE, Vol. 5713, pp. 1-8 (2005).

[8] S. Kawata, H. -B. Sun, T. Tanaka, and K. Takada, “Finer features for functional microdevices: Micromachines can be created with higher resolution using two-photon absorption”, Nature, Vol. 412, No. 697, pp. 697-698 (2001).

[9] A. Ostendorf, “Precise Structuring Using Femtosecond Lasers”, Rev. Laser Eng., Vol. 30, No. 5, pp. 221-225 (2002).

[10] M. Birnbaum, “Semiconductor Surface Damage Produced by Ruby Lasers”, J. Appl. Phys., Vol. 36, pp. 3688-3689 (1965).

[11] A. M. Bonch-Bruevich, M. N. Libenson, V. S. Makin, and V. V. Trubaev, “Surface electromagnetic waves in optics”, Opt. Eng., Vol. 31, No. 4, pp. 718-730 (1991).

[12] D. C. Emmony, R. P. Howson, and L. J. Willis, “Laser mirror damage in germanium at 10.6 μm”, Appl. Phys. Lett., Vol. 23, No.11, pp. 598-600 (1973).

[13] S. Sakabe, M. Hashida, S. Tokita, S. Namba, and K. Okamuro, “Mechanism for self-formation of periodic grating structures on a metal surface by a femtosecond laser pulse”, Phys. Rev. B, Vol. 79, No. 033409 (2009).

[14] J. Bonse, J. Krüger, S. Höhm, and A. Rosenfeld, “Femtosecond laser-induced periodic surface structures”, J. Laser Appl., Vol. 24, No. 042006 (2012).

[15] S. Sarbada, Y. C. Shin, “Superhydrophobic contoured surfaces created on metal and polymer using a femtosecond laser”, Appl. Sur. Sci., Vol. 405, pp. 465-475 (2017).

[16] D. Huerta-Murillo, A. García-Girón, J. M. Romano, J. T. Cardoso, F. Cordovilla, M. Walker, S. S. Dimov, J. L. Ocaña, “Wettability modification of laser-fabricated hierarchical surface structures in Ti-6Al-4V titanium alloy”, Appl. Surf. Sci., Vol. 463, pp. 838-846 (2019).

[17] A. Žemaitis, A. Mimidis, A. Papadopoulos, P. Gečys, G. Račiukaitis, E. Stratakis, and M. Gedvilas, “Controlling the wettability of stainless steel from highly-hydrophilic to super-hydrophobic by femtosecond laser-induced ripples and nanospikes”, RSC Adv., Vol. 10, pp. 37956-37961 (2020).

[18] R. Takaku, Q. Wen, S. Cray, M. Devlin, S. Dicker, S. Hanany, T. Hasebe, T. Iida, N. Katayama, K. Konishi, M. Kuwata-Gonokami, T. Matsumura, N. Mio, H. Sakurai, Y. Sakurai, R. Yamada, J. Yumoto, “Large

diameter millimeter-wave low-pass filter made of alumina with laser ablated anti-reflection coating", Opt. Exp., Vol. 29, No. 25, pp. 41745-41765 (2021).

[19] B. Franta, E. Mazur, and S. K. Sundaram, "Ultrafast laser processing of silicon for photovoltaics", Int. Mater. Rev., Vol. 63, No. 4, pp. 227-240 (2017).

[20] A. Erdemir, "Review of engineered tribological interfaces for improved boundary lubrication", Tribol. Int., Vol. 38, pp. 249-256 (2005).

[21] C. Momma, B. N. Chichkov, S. Norte, F. von Alvecnsleben, A. Tünnermann, H. Welling, and B. Wellegehausen, "Short-pulse laser ablation of solid targets", Opt. Commun., Vol. 129, No. 134 (1996).

[22] M. Hashida, A. F. Semerok, O. Gobert, G. Petite, Y. Izawa, and J. F-. Wagner, "Ablation threshold dependence on pulse duration for copper", Appl. Surf. Sci., Vol. 197-198, pp. 862-867 (2002).

[23] B. H. Christensen, K. Vestentoft, and P. Balling, "Short-pulse ablation rates and the two-temperature model", Appl. Surf. Sci., Vol. 253, pp. 6347-6352 (2007).

[24] K. Furusawa, K. Takahashi, H. Kumagai, K. Midorikawa, and M. Obara, "Ablation characteristics of Au, Ag, and Cu metals using a femtosecond Ti:sapphire laser", Appl. Phys. A, Vol. 69, pp. 359-366 (1999).

[25] J. Lopez, R. Kling, R. Torres, A. Lidolff, M. Delaigue, S. Ricaud, C. Hönninger, and E. Mottay, "Comparison of picosecond and femtosecond laser ablation for surface engraving of metals and semiconductors", Proc. of SPIE, Vol. 8243, No. 82430O (2012).

[26] T. Shibuya, D. Yoshitomi, D. Satoh, K. Sakaue, M. Tanaka, H. Takada, H. Ogawa, K. Torizuka, Y. Kobayashi, R. Kuroda, "Ablation thresholds and morphological changes of poly-L-lactic acid for pulse durations in the femtosecond-to picosecond regime", Surf. Interface Anal., Vol. 52, No. 12, pp. 1145-1149 (2020).

[27] T. Takahashi, S. Tani, R. Kuroda, and Y. Kobayashi, "Precision measurement of ablation thresholds with variable pulse duration laser", Appl. Phys. A, Vol. 126, No. 582 (2020).

[28] D. Giguére, G. Olivié, F. Vidal, S. Toetsch, G. Girard, T. Ozaki, and J-C. Keiffer, "Laser ablation threshold dependence on pulse duration for fused silica and corneal tissues: experiments and modeling", J. Opt. Soc. Am. A, Vol. 24, No. 6, pp. 1562-1568 (2007).

[29] K. J. Palm, J. B. Murray, T. C. Narayan, and J. N. Munday, "Dynamic Optical Properties of Metal Hydrides", ACS Photonics, Vol. 5, pp. 4677-4686 (2018).

[30] K. M. McPeak, S. V. Jayanti, S. J. P. Kress, S. Meyer, S. Iotti, A. Rossinelli, and D. J. Norris, "Plasmonic Films Can Easily Be Better: Rules and Recipes", ACS Photonics, Vol. 2, pp. 326-333 (2015).

[31] W. S. M. Werner, K. Glantschnig, and C. Ambrosch-Draxl, "Optical constants and inelastic electron-scattering data for 17 elemental metals", J. Phys Chem Ref. Data, Vol. 38, No. 4, pp. 1013-1092 (2009).

[32] J. Byskov-Nielsen, J-M. Savolainen, M. S. Christensen, and P. Balling, "Ultra-short pulse laser ablation of copper, silver and tungsten: experimental data and two-temperature model simulations", Applied Physics A, Vol. 103, pp. 447-453 (2011).

[33] P. B. Corkum, F. Brunel, and, N. K. Sherman, "Thermal response of metals to ultrashort-pulse laser excitation", Physical Review Letters, Vol. 61, No. 25, pp. 2886-2889 (1988).

[34] I. A. Artyukov, D. A. Zayaniy, A. A. Ionin. S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, and P. N. Saltuganov, "Relaxation Phenomena in Electronic and Lattice Subsystems on Iron Surface during Its Ablation by

Ultrashort Laser Pulses", JETP Lett., Vol. 99, No. 1, pp. 51-55 (2014).

[35] E. G. Gamaly, "The physics of ultra-short laser interaction with solid at non-relativistic intensities", Phys. Rep., Vol. 508, pp. 91-243 (2011).

[36] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perel'man, "Electron emission from metal surface exposed to ultrashort pulses", Zh. Eksp. Teor. Fiz., Vol. 66, pp. 776-781 (1974).

[37] Z. Lin and L. V. Zhigilei, "Thermal excitation of d band electrons in Au: implications for laser-induced phase transformations", Proceedings of SPIE, Vol. 6261, pp. 1-14 (2006).

[38] Z. Lin and L. V. Zhigilei, "Temperature dependences of the electron-phonon coupling, electron heat capacity and thermal conductivity in Ni under femtosecond laser irradiation", Applied Surface Science, Vol. 253, pp. 6295-6300 (2007).

[39] Z. Lin and L. V. Zhigilei, "Electron-phonon coupling and electron heat capacity of metals under conditions of strong electron-phonon nonequilibrium", Physical Review B, Vol. 77, No. 075133 (2008).

[40] Y. Zhang and J. K. Chen, "Melting and resolidification of gold film irradiated by nano- to femtosecond lasers", Appl. Phys. A, Vol. 88, pp. 289-297 (2007).

[41] A. Suslova and A. Hassanein, "Simulation of femtosecond laser absorption by metallic targets and their thermal evolution", Laser Part. Beams, Vol. 35, pp. 415-428 (2017).

[42] B. H. Christensen, K. Vestentoft, and P. Balling, "Short-pulse ablation rates and two-temperature model", Appl. Surf. Sci., Vol. 253, pp. 6347-6352 (2007).

[43] A. Gragossian, S. H. Tavassoli, and B. Shokri, "Laser ablation of aluminum from normal evaporation to phase explosion", J. Appl. Phys., Vol. 105, No. 103304 (2009).

[44] S. Tan, J. Wu, Y. Zhang, M. Wang, and Y. Ou, "A Model of Ultra-Short Pulsed Laser Ablation of Metal with Considering Plasma Shielding and Non-Fourier Effect", Energies, Vol. 11, No. 3163 (2018).

[45] D.Perez and L.J.Lewis, "Ablation of Solids under Femtosecond Laser Pulses", Phys. Rev. Lett., Vol. 89, No. 25, pp. 255504 (2002).

[46] D.Perez and L.J.Lewis, "Molecular-dynamics study of ablation of solids under femtosecond laser pulses", Phys. Rev. B, Vol. 67, No. 184102 (2003).

[47] Y. Hirayama, and M. Obara, "Heat-affected zone and ablation rate of copper ablated with femtosecond laser", J. Appl. Phys., Vol. 97, No. 064903 (2005).

[48] L.J.Lewis, and D.Perez, "Laser ablation with short and ultrashort laser pulses: Basic mechanisms from molecular-dynamics simulations", Appl. Surf. Sci., Vol. 255, pp. 5101-5106 (2009).

[49] L. V. Zhigilei, Z. Lin, and D. S. Ivanov, "Atomistic Modeling of Short Pulse Laser Ablation of Metals: Connections between Melting, Spallation, and Phase Explosion", J. Phys. Chem. C, Vol. 113, pp. 11892-11906 (2009).

[50] K. Eidmann, J. Meyer-ter-Vehn, and T. Schlegel, "Hydrodynamic simulation of subpicosecond laser interaction with solid-density matter", Phys. Rev. E, Vol. 62, No. 1, pp. 1202-1214 (2000).

[51] J. P. Colombier, P. Combis, F. Bonneau, R. Le Harzic, and E. Audouard, "Hydrodynamic simulation of metal ablation by femtosecond laser irradiation", Phys. Rev. E, Vol. 71, No. 165406 (2005).

[52] S. Eliezer, N. Eliaz, E. Grassman, D. Fisher, I. Gouzman, Z. Henis, S. Pecker, Y. Horovits, M. Fraenkel, S. Maman, and Y. Lereah, "Synthesis of nanoparticles with femtosecond laser pulses", Phys. Rev. B, Vol.

69, No. 144119 (2004).

[53] K. Oguri, Y. Okano, T. Nishikawa, and H. Nakano, “Dynamics of femtosecond laser ablation studied with time-resolved x-ray absorption fine structure imaging”, Phys. Rev. B, Vol. 79, No. 144106 (2009).

[54] C. Momma, S. Norte, B. N. Chichkov, F. von Alvecnsleben, A. Tünnermann, H. Welling, and B. Wellegehausen, “Short-pulse laser ablation of solid targets”, Opt. Commun., Vol. 129, No. 134 (1996).

[55] K. Nagaki, T. Kadono, T. Sakaiya, T. Kondo, K. Kurosawa, Y. Hironaka, K. Shigemori, and M. Arakawa, “Recovery of entire shocked samples in a range of pressure from ~100 GPa to Hugoniot elastic limit”, Meteorit. Planet. Sci., Vol. 51, No. 6, pp. 1153-1162 (2016).

[56] R. Evans, A. D. Badger, F. Falliès, M. Mahdieh, and T. A. Hall, “Time- and space-resolved optical probing of femtosecond-laser-driven shock waves in aluminum”, Phys. Rev. Lett., Vol. 77, No. 16, pp. 3359-3362 (1996).

[57] K. T. Gahagan, D. S. Moore, D. J. Funk, R. L. Rabie, and S. J. Buelow, “Measurement of Shock Wave Rise Times in Metal Thin Films”, Phys. Rev. Lett., Vol. 85, No. 15, pp. 3205-3208 (2000).

[58] K. T. Gahagan, D. S. Moore, D. J. Funk, J. H. Reho, and R. L. Rabie, “Ultrafast interferometric microscopy for laser-driven shock wave characterization”, J. Appl. Phys., Vol. 92, No. 7, pp. 3679-3682 (2002).

[59] J. P. Cuq-Lelandais, M. Boustie, L. Berthe, T. de Rességuier, P. Combis, J. P. Colombier, M. Nivard, and A. Claverie, “Spallation generated by femtosecond laser driven shocks in thin metallic targets”, J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 42, No. 065402 (2009).

[60] B. J. Demaske, V. V. Zhakhovsky, N. A. Inogamov, and I. I. Oleynik, “Ultrashort shock waves in nickel induced by femtosecond laser pulses”, Phys. Rev. B, Vol. 87, No. 054109 (2013).

[61] D. Milathianaki, S. Boutet, G. J. Williams, A. Higginbotham, D. Ratner, A. E. Gleason, M. Messerschmidt, M. M. Seibert, D. C. Swift, P. Hering, J. Robinson, W. E. White, and J. S. Wark, “Femtosecond Visualization of Lattice Dynamics in Shock-Compressed Matter”, Science, Vol. 342, No. 6155, pp. 220-223 (2013).

[62] 松田朋己, ”フェムト秒レーザ駆動衝撃波による鉄への高密度格子欠陥導入とその表面特性に及ぼす影響”, 大阪大学大学院工学研究科 博士論文 (2014).

[63] T. Sano, T. Matsuda, A. Hirose, M. Ohata, T. Terai, T. Kakeshita, Y. Inubushi, T. Sato, K. Miyanishi, M. Yabashi, T. Togashi, K. Tono, O. Sakata, Y. Tange, K. Arakawa, Y. Ito, T. Okuchi, T. Sato, T. Sekine, T. Mashimo, N. Nakanii, Y. Seto, M. Shigeta, T. Shobu, Y. Sano, T. Hosokai, T. Matsuoka, T. Yabuushi, K. A. Tanaka, N. Ozaki, and R. Kodama, “X-ray free electron laser observation of ultrafast lattice behaviour under femtosecond laser-driven shock compression in iron”, Sci. Rep., Vol. 13, No. 13796 (2023).

[64] A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, L. V. Seleznev, and D. V. Sinitsyn, “Generation and Detection of Superstrong Shock Waves during Ablation of an Aluminum Surface by Intense Femtosecond Laser Pulses”, JETP Lett., Vol. 94, No. 1, pp. 34-38 (2011).

[65] E. I. Ageev, V. P. Veiko, S. I. Kudryashov, A. A. Petrov, and A. A. Samokhvalov, “Contact and Non-Contact Ultrasonic Diagnostics of Shock Waves Driven by Single-Shot Femtosecond Laser Ablation of Titanium”, JETP Lett., Vol. 102, No. 10, pp. 693-696 (2015).

[66] E. I. Ageev, S. I. Kudryashov, N. V. Nikonorov, R. K. Nuryev, A. A. Petrov, and A. A. Samokhvalov, “Non-contact ultrasonic acquisition of femtosecond laser-driven ablative Mbar-level shock waves on Ti

alloy surface", Appl. Phys. Lett., Vol. 108, No. 084106 (2016).
[67] T. Matsuda, T. Sano, K. Arakawa, and A. Hirose, "Dislocation structure produced by an ultrashort shock pulse", J. Appl. Phys., Vol. 116, No. 183506 (2014).
[68] T. Matsuda, T. Sano, K. Arakawa, and A. Hirose, "Multiple-shocks induced nanocrystallization in iron", Appl. Phys. Lett., Vol. 105, No. 021902 (2014).
[69] T. Sano, H. Mori, E. Ohmura, and I. Miyamoto, "Femtosecond laser quenching of the ε phase of iron", Appl. Phys. Lett., Vol. 83, No. 17, pp. 3498-3500 (2003).
[70] M. Tsujino, T. Sano, O. Sakata, N. Ozaki, S. Kimura, S. Takeda, M. Okoshi, N. Inoue, R. Kodama, K. F. Kojiro, and A. Hirose, "Synthesis of submicron metastable phase of silicon using femtosecond laser-driven shock wave", J. Appl. Phys., Vol. 110, No. 126103 (2011).
[71] 中西克佳、森影康、川畑篤敬、鞘一、"母材打撃ハンマーピーニングによる溶接継手部の疲労強度向上方法に関する研究"、土木学会論文集 A1（構造・地震工学）、Vol. 71, No. 1, pp. 10-19 (2015).
[72] 小林祐次、"ピーニングによる表面改質"、精密工学会誌、Vol. 81, No. 12, pp. 1062-1066 (2015).
[73] 井上明子、関川貴洋、小栗和幸、田川哲哉、石川考司、"微粒子ショットピーニングによる高強度アルミニウム合金の疲労寿命向上効果の解明"、日本金属学会誌、Vol. 74, No. 6, pp. 370-377 (2010).
[74] 齋藤昇、守中廉、"ウォータージェットピーニングによる炉内機器の残留応力低減"、溶接学会誌、Vol. 74, No. 7, pp. 469-472 (2006).
[75] 祖山均、"キャビテーション・ショットレス・ピーニングによる軽金属材料の表面改質"、軽金属学会誌、Vol. 56, No. 1, pp. 56-62 (2006).
[76] 佐野雄二、小畑稔、山本哲夫、"レーザピーニングによる溶接部の残留応力改善"、溶接学会誌、Vol. 74、No. 8 、pp. 525-528 (2005).
[77] S. Suresh、岸本喜久雄、"材料の疲労破壊"、培風館 (2005) 第 1 章
[78] 小林祐次、"ピーニングによる表面改質"、精密工学会誌、Vol. 81、No. 12、pp. 1062-1066 (2015).
[79] 佐野雄二、向井成彦、小畑稔、加藤裕美、山本哲夫、"レーザピーニングによる原子炉構造物の応力腐食割れ対策"、溶接学会誌、Vol. 75、No. 7、pp. 579-582 (2006).
[80] Y.K. Gyao, "Improvement of fatigue property in 7050–T7451 aluminum alloy by laser peening and shot peening", Materials Science and Engineering: A, Vol. 528, Issues 10-11, pp. 3823-3828 (2011).
[81] M. Kattoura, S. R. Mannava, D. Qian, V. K. Vasudevan, "Effect of laser shock peening on residual stress, microstructure and fatigue behavior of ATI 718Plus alloy", Int. J. Fatigue, Vol. 102, pp. 121-134 (2017).
[82] J. Kaufman, Z. Špirit, V. K. Vasudevan, M. A. Steiner, S. R. Mannava, J. Brajer, L. Pina, and T. Mocek, "Effect of Laser Shock Peening Parameters on Residual Stresses and Corrosion Fatigue of AA5083", Metals, Vol. 11, No. 1635 (2021).
[83] C. Samuel, A. Moganraj, S. Swaroop, K. Praveenkumar, A. Natarajan, M. N. Rao, B. Syed, and B. Bhattacharya, "Effect of Laser Shock Peening without Coating on Grain Size and Residual Stress Distribution in a Microalloyed Steel Grade", Crystals, Vol. 13, No. 212 (2023).
[84] T. Kato, Y. Sakino, and Y. Sano, "Effect of Laser Peening with a Microchip Laser on Fatigue Life in Butt-Welded High-Strength Steel", Appl. Mech., Vol. 2, pp. 878-890 (2021).
[85] Y. Sano, T. Kato, Y. Mizuta, S. Tamaki, K. Yokofujita, T. Taira, T. Hosokai, and Y. Sakino, "Development

of a portable laser peening device and its effect on the fatigue properties of HT780 butt-welded joints", Forces in Mechanics, Vol. 7, No. 100080 (2022).

[86] A. W. Warren, Y. B. Guo, and S. C. Chen, "Massive parallel laser shock peening: Simulation, analysis, and validation", Int. J. Fatigue, Vol. 30, pp. 188-197 (2008).

[87] M. Tsuyama, Y. Kodama, Y. Miyamoto, I. Kitawaki, M. Tsukamoto, and H. Nakano, "Effects of Laser Peening Parameters on Plastic Deformation in Stainless Steel", J. Laser Micro Nanoeng., Vol. 11, No. 2, pp. 227-231 (2016).

[88] T. Sano, T. Eimura, R. Kashiwabara, T. Matsuda, Y. Isshiki, and A. Hirose, "Femtosecond laser peening of 2024 aluminum alloy without a sacrificial overlay under atmospheric conditions", J. Laser Appl., Vol. 29, No. 012005 (2017).

[89] M. Yoshida, I. Nishibata, T. Matsuda, Y. Ito, N. Sugita, A. Shiro, T. Shobu, K. Arakawa, A. Hirose, and T. Sano, "Influence of pulse duration on mechanical properties and dislocation density of dry laser peened aluminum alloy using ultrashort pulsed laser-driven shock wave", J. Appl. Phys., Vol. 132, No.075101 (2022).

[90] X. Zhao and Y. C. Shin, "Femtosecond laser ablation of aluminum in vacuum and air at high laser intensity", Appl. Surf. Sci., Vol. 283, pp. 94-99 (2013).

[91] N. N. Nedialkov, P. A. Atanasov, D. Breitling, G. Heusel, F. Dausinger, "Ablation of metals by ultrashort laser pulses", Proc. of SPIE, Vol. 5830, pp. 80-84 (2005).

[92] J-M. Savolainen, M. S. Christensen, and P. Balling, "Material swelling as the first step in the ablation of metals by ultrashort laser pulses", Phys. Rev. B, Vol. 84, No. 193410 (2011).

[93] R. Le Harzic, D. Breitling, M. Weikert, S. Sommer, C. Fohl, F. Dausinger, S. Valette, C. Donnet, E. Audouard, "Ablation comparison with low and high energy densities for Cu and Al with ultra-short laser pulses", Appl. Phys. A, Vol. 80, pp. 1589-1593 (2005).

[94] W. Hu, Y. C. Shin, and G. King, "Effect of air breakdown with a focusing lens on ultrashort laser ablation", Appl. Phys. Lett., Vol. 99, No. 234104 (2011).

[95] C. Pasquier, M. Sentis, O. Utéza, and N. Sanner, "Predictable surface ablation of dielectrics with few-cycle laser pulse even beyond air ionization", Appl. Phys. Lett. Vol. 109, No. 051102 (2016).

[96] R. W. Boyd, "Nonlinear Optics, third edition", Academic Press (2008).

[97] 黒田和男, "非線形光学", コロナ社, (2008).

[98] 服部利明, "非線形光学入門", 裳華房, (2009).

[99] J. Kerr, "A new relation between electricity and light: Dielectrified media birefringent", Phil. Mag. S. 4, Vol. 50, No. 332, pp. 337-348 (1875).

[100] J. K. Wahlstrand, Y. H. Cheng, and H. M. Milchberg, "Absolute measurement of the transient optical nonlinearity in N_2, O_2, N_2O, and Ar", Phys. Rev. Lett., Vol. 85, No. 043820 (2012).

[101] D. Thul, M. Rechardson, and S. R. Fairchild, "Spatially resolved filament wavefront dynamics", Sci. Rep., Vol. 10, No. 8920, pp. 1-11 (2020).

[102] S. Zahedpour, J. K. Wahlstrand, and H. M. Milchberg, "Measurement of the nonlinear refractive index of air constituents at mid-infrared wavelemngths", Opt. Exp., Vol. 40, No. 24, pp. 5794-5797 (2015).

[103] V. Loriot, E. Hertz, O. Faucher, and B. Lavorel, "Measurement of high order Kerr refractive index of major air components", Opt. Exp., Vol. 17, No. 16, pp. 13429-13434 (2009).

[104] V. Loriot, E. Hertz, O. Faucher, and B. Lavorel, "Measurement of high order Kerr refractive index of major air components: erratum", Opt. Exp., Vol. 18, No. 3, pp. 3011-3012 (2010).

[105] H. R. Lange, G. Grillon, J. -F. Ripoche, M. A. Franco, B. Lamouroux, B. S. Prade, and A. Mysyrowicz, "Anomalous long-range propagation of femtosecond laser pulses through air: moving focus or pulse self-guiding?", Opt. Exp., Vol. 23, No. 2, pp. 120-122 (1998).

[106] E. T. J. Nibbering, G. Grillon, M. A. Franco, B. S. Prade, and A. Mysyrowicz, "Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N_2, and O_2 by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses", J. Opt. Sci. Am. B, Vol. 14, No. 3, pp. 650-660 (1997).

[107] E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon, B. S. Prade, M. A. Franco, F. Salin, and A. Mysyrowicz, "Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air", Opt. Lett., Vol. 21, No. 1, pp. 62-64 (1996).

[108] Á. Börzsönyi, Z. Heiner, A. P. Kovács, M. P. Kalashnikov, and K. Osvay, "Measurement of pressure dependent nonlinear refractive index of inert gases", Opt. Exp., Vol. 18, No. 25, pp. 25847-25854 (2010).

[109] T. G. B. de Souza, E. C. Barbano, S. C. Zilio, and L. Misoguti, "Measurement of nonlinear refractive indices of air, oxygen, and nitrogen in capillary by changing the temporal width of short laser pulses", J. Opt. Sci. Am. B, Vol. 34, No. 10, pp. 2233-2237 (2017).

[110] P. Bejót, J. Kasparian, S. Henin, V. Loriot, T. Vieillard, E. Hertz, O. Faucher, B. Lavorel, and J. -P. Wolf, "Higher-order Kerr terms allow ionization-free filamentation in gases", Phys. Rev. Lett., Vol. 104, No. 103903 (2010).

[111] W. Ettoumi, P. Bejót, Y. Petit, V. Loriot, E. Hertz, O. Faucher, B. Lavorel, J. Kasparian, and J. -P. Wolf, "Spectral dependence of purely-Kerr-driven filamentation in air and argon", Phys. Rev. A, Vol. 82, No. 033826 (2010).

[112] P. Bejót, E. Hertz, B. Lavorel, J. Kasparian, J. -P. Wolf, and O. Faucher, "From higher-order Kerr nonlinearities to quantitative modeling of third and fifth harmonic generation in argon", Opt. Lett. Vol. 36, No. 6, pp. 828-830 (2011).

[113] V. Loriot, P. Bejót, W. Ettoumi, Y. Petit, J. Kasparian, S. Henin, E. Hertz, B. Lavorel, O. Faucher, and J. -P. Wolf, "On negative higher-order Kerr effect and filamentation", Laser Phys. Vol. 21, No. 7, pp. 1319-1328 (2011).

[114] T. W. Huang, C. T. Zhou, and X. T. He, "Propagation of femtosecond terawatt laser pulses in N_2 gas including higher-order Kerr effects", AIP Adovances, Vol. 2, No. 042190 (2012).

[115] C. Brée, A. Demircan, and G. Steinmeyer, "Saturation of the all-optical Kerr effect", Phys. Rev. Lett., Vol. 106, No. 183902 (2011).

[116] C. Brée, A. Demircan, and G. Steinmeyer, "Kramers-Kronig relations and high-order nonlinear

susceptibilities", Phys. Rev. A, Vol. 85, No. 033806 (2012).

[117] B. Borchers, C Brée, S. Birkholz, A. Demircan, and G. Steinmeyer, "Saturation of the all-optical Kerr effect in solids", Opt. Exp., Vol. 37, No. 9, pp. 1541-1543 (2012).

[118] M. Kolesik, E. M. Wright, and J. V. Moloney, "Femtosecond filamentation in air and higher-order nonlinearities", Opt. Exp., Vol. 35, No. 15, pp. 2550-2552 (2010).

[119] P. Polynkin, M. Kolesik, E. M. Wright, and J. V. Moloney, "Experiment tests of the new paradigm for laser firamentation in gases", Phys. Rev. Lett., Vol. 106, No. 153902 (2012).

[120] A. Teleki, E. M. Wright, and M. Kolesik, "Microscopic model for the higher-order nonlinearities in optical filaments", Phys. Rev. A, Vol. 82, No. 065801 (2010).

[121] J. M. Brown, E. M. Wright, J. V. Moloney, and M. Kolesik, "On the relative roles of higher-order nonlinearities and ionization in ultrafast light-matter interactions", Opt. Lett., Vol. 37, No. 10, pp. 1604-1606 (2012).

[122] J. K. Wahlstrand, Y. -H. Cheng, Y. -H. Chen, and H. M. Milchberg, "Optical nonlinearity in Ar and N_2 near the ionization threshold", Phys. Rev. Lett., Vol. 107, No. 103901 (2011).

[123] D. L. Weerawarne, X. Gao, A. L. Gaeta, amd B. Shim, "Higher-order nonlinearities revisited and their effect on harmonic generation", Phys. Rev. Lett., Vol. 114, No. 09390 (2015).

[124] A. Couairon, E. Brambilla, T. Corti, D. Majus, O. de J. Ramirez-Góngora, and M. Kolesik, "Practitioner's guide to laser pulse propagation models and simulation", Eur. Phys. J. Special Topics, Vol. 195, pp. 5-76 (2011).

[125] M. Kolesik and J. V. Moloney, "Modeling and simulation techniques in extreme nonlinear optics of gaseous and condensed media", Rep. Prog. Phys., Vol. 77, No. 016401, pp. 1-36 (2014).

[126] M. L. Miguez, T. G. B. de Souza, E. C. Barbano, S. C. Zilio, and L. Misoguti, "Measurement of third-order nonlinearities in selected solvents as a function of the pulse width", Opt. Exp., Vol. 25, No. 4, pp. 3553-3565 (2017).

[127] H. B. Bebb and A. Gold. "Multiphoton ionization of hydrogen and rare-gas atoms", Phys. Rev., Vol. 143, No. 1, pp. 1-24 (1966).

[128] S. L. Chin, N. R. Isenor, and M. Young, "Multiphoton ionization of Hg and Xe", Phys. Rev., Vol. 188, No. 1, pp. 7-8 (1969).

[129] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, and G. Petite, "Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atom", Phys. Rev. Lett., Vol. 42, No. 17, pp. 1127-1130 (1979).

[130] P. Kruit, J. Kimman, H. G. Muller, and M. J. van der Wiel, "Electron spectra from multiphoton ionization of xenon at 1064, 532, and 355 nm", Phys. Rev. A, Vol. 28, No. 1, pp. 248-255 (1983).

[131] T. J. Mcllrath, P. H. Bucksbaum, R. R. Freeman, and M. Bashkansky, "Above-threshold ionization processes in xenon and krypton", Phys. Rev. A, Vol. 35, No. 11, pp. 4611-4623 (1987).

[132] N. Aközbek, A. Becker, M. Scalora, S. L. Chin, and C. M. Bowden, "Continuum generation of the third-harmonic pulse generated by an intense femtosecond IR laser pulse in air", Appl. Phys. B, Vol. 77,

pp. 173-183 (2013).

[133] J. Muth-Böhm, A. Becker, and F. H. M. Faisal, "Suppressed Molecular Ionization for a Class of Diatomics in Intense Femtosecond Laser Fields", Phys. Rev. Lett., Vol. 85, No. 11, pp. 2280-2283(2000).

[134] Gy. Farkas, and S. L. Chin, "Experiment on the optical tunneling process of electrons from a gold surface induced by mode-locked CO2 laser pulse trains", Applied Physics B, Vol. 37(1985), pp. 141-143

[135] S. Augst, D. D. Meyerhofer, D. Strickland, and S. L. Chin, "Laser ionization of noble gases by coulomb-barrier suppression", J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 8, No. 4, pp. 858-867 (1991).

[136] N. B. Delone, V. P. Krainov, "Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field", Physics-Uspekhi, Vol. 41, No. 5, pp. 469-485 (1998).

[137] L. V. Keldysh, "Ionization in the field of a strong electromagnetic wave", Sov. Phys. JETP, Vol. 20, No. 5, pp. 1307-1314 (1965).

[138] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent'ev, "Ionization of atoms in an alternating electric field", Sov. Phys. JETP, Vol. 23, No. 5, pp. 924-934 (1966).

[139] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent'ev, "Ionization of atoms in an alternating electric field: II", Sov. Phys. JETP, Vol. 24, No. 1, pp. 207-216 (1967).

[140] A. M. Perelomov and V. S. Popov, "Ionization of atoms in an alternating electric field: III", Sov. Phys. JETP, Vol. 25, No. 2, pp. 336-343 (1967).

[141] A. Talebpour, J. Yang, S. L. Chin, "Semi-empirical model for the rate of tunnel ionization of N_2 and O_2 molecule in an intense Ti:sapphire laser pulse", Opt. Commun., Vol. 163, pp. 29-32 (1999).

[142] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Kraînov, "Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field", Sov. Phys. JETP, Vol. 64, No. 6, pp. 1191-1194 (1986).

[143] J. K. Koga, K. Moribayashi, Y. Fukuda, S. V. Bulanov, A. Sagisaka, K. Ogura, H. Daido, M. Yamagiwa, T. Kimura, T. Fujikawa, M. Ebina, and K. Akihama, "Simulation and experiments of the laser induced breakdown of air for femtosecond to nanosecond order pulses", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 43, No. 025204 (2010).

[144] A. Schmitt-Sody, H. G. Kurz, L. Bergé, S. Skupin, and P. Polynkin, "Picosecond laser filamentation in air," New J. Phys. Vol. 18, No. 093005 (2016).

[145] C. Tian and C. R. Vidal, "Electron impact ionization of N_2 and O_2: contributions from different dissociation channels of multiply ionized molecules," J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., Vol. 31, pp. 5369-5381 (1998).

[146] H. Sambe, "Steady States and Quasienergies of a Quantum-Mechanical System in an Oscillating Field", Phys. Rev. A, Vol. 7, No. 6, pp. 2203-2213 (1973).

[147] T. Hiroi, Y. Morimoto, R. Kanya, and K. Yamanouchi, "Observation of laser-assisted electron-impact ionization in ultrashort intense laser fields", Phys. Rev. A, Vol. 104, No. 062812 (2021).

[148] R. Rankin, C. E. Capjack, N. H. Burnett, and P. B. Corkum, "Refraction effects associated with multiphoton ionization and ultrashort-pulse laser propagation in plasma waveguides", Opt. Lett., Vol. 16, No. 11, pp. 835-837 (1991).

[149] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou, “Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air”, Opt. Lett., Vol. 20, No. 1, pp. 73-75 (1995).

[150] S. L. Chin, T. -J. Wang, C. Marceau, J. Wu, J. S. Liu, O. Kosareve, N. Panov, Y. P. Chen, J. -F. Daigle, S. Yuan, A. Azarm, W.W. Liu, T. Seideman, H. P. Zeng, M. Richardson, R. Li, and Z. Z. Xu, “Advances in intense femtosecond laser filamentation in air”, Laser Phys., Vol. 22, No. 1, pp. 1-53 (2012).

[151] R. Y. Chiao, E. Garmire, and C. H. Townes, “Self-trapping of optical beams”, Phys. Rev. Lett., Vol. 13, No. 15, pp. 479-482 (1964).

[152] J. Kasparian, R. Sauerbrey, S. L. Chin, “The critical laser intensity of self-guided light filaments in air”, Appl. Phys. B, Vol. 71, pp. 877-879 (2000).

[153] A. Becker, N. Aközbek, K. Bijayalakshimi, E. Oral, C. M. Bowden, S. L. Chin. “Intensity clamping and re-focusing of intense femtosecond laser pulses in nitrogen molecular gas”, Appl. Phys. B, Vol. 73, pp. 287-290, (2001).

[154] L. Bergé, S. Skupin, R. Nuter, J. Kasparin, and J. -P. Wolf. “Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media”, Rep. Prog. Phys., Vol. 70, pp. 1633-1713 (2007).

[155] J. Kasparian and J. -P. Wolf, “Physics and applications of atmospheric nonlinear optics and filamentation”, Opt. Exp. Vol. 16, No. 1, pp. 466-493 (2008).

[156] G. P. Agrawal, “Nonlinear Fiber Optics, sixth edition”, Academic press (2019)

[157] V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, I. S. Golubtsov, W. Liu, A. Becker, N. Akozbek, C. M. Bowden, and S. L. Chin, “Self-transformation of a powerful femtosecond laser pulse into a white-light laser pulse in bulk optical media (or supercontinuum generation)”, Appl. Phys. B, Vol. 77, pp. 149-165 (2003).

[158] W. Liu, F. Théberge, E. Arévalo, J. -F. Gravel, A. Becker, and S. L. Chin, “Experiment and simulations on the energy reservoir effect in femtosecond light filaments”, Opt. Lett., Vol. 30, No. 19, pp. 2602-2604 (2005).

[159] P. Polynkin and M. Kolesik, “Critical power for self-focusing in the case of ultrashort laser pulses”, Phys. Rev. A, Vol. 87, No. 053829 (2013).

[160] F. Théberge, W. Liu, P. Tr. Simard, A. Becker, and S. L. Chin, “Plasma density inside a femtosecond laser filament in air: Strong dependence on external focusing”, Phys. Rev. E, Vol. 74, No. 036406 (2006).

[161] S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron, S. D. Moustaizis, D. Anglos, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, “Femtosecond and picosecond ultraviolet laser filaments in air: experiments and simulations”, Opt. Commun. Vol. 197, pp. 131-143 (2001).

[162] I. S. Golubtsov, V. P. Kandidov, and O. G. Kosareva, “Initial phase modulation of a high-power femtosecond laser pulse as a tool for controlling its filamentation and generation of a supercontinuum in air”, Quantum Electron., Vol. 33, No. 6, pp. 525-530 (2003).

[163] S. Tani and Y. Kobayashi, “Ultrafast laser ablation simulator using deep neural networks”, Sci. Rep., Vol. 12, No. 5837 (2022).

[164] K. Bamoto, H. Sakurai, S. Tani, and Y. Kobayashi, “Autonomous parameter optimization for

femtosecond laser micro-drilling", Opt. Exp., Vol. 30, No. 1, pp. 243-254 (2022).

[165] F. Théberge, W. Liu, P. Tr. Simard, A. Becker, and S. L. Chin, "Plasma density inside a femtosecond laser filament in air: strong dependence on external focusing", Phys. Rev. E, Vol. 74, No. 036406 (2006).

[166] P. Prem Kiran, S. Baguchi, S. R. Krishnan, C. L. Arnold, G. R. Kumar, and A. Couairon, "Focal dynamics of multiple filaments: microscopic imaging and reconstruction," Phys. Rev. A, Vol. 82, No. 013805 (2010).

[167] J. K. Koga, K. Moribayashi, Y. Fukuda, S. V. Bulanov, A. Sagisaka, K. Ogura, H. Daido, M. Yamagiwa, T. Kimura, T. Fujikawa, M. Ebina, and K. Akihama, "Simulation and experiments of the laser induced breakdown of air for femtosecond to nanosecond order pulses," J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 43, No. 025204 (2010).

[168] A. Schmitt-Sody, H. G. Kurz, L. Bergé, S. Skupin, and P. Polynkin, "Picosecond laser filamentation in air," New J. Phys., Vol. 18, No. 093005 (2016).

[169] Yu. E. Geints, D. V. Mokrousova, D. V. Pushkarev, G. E. Rizaev, L. V. Seleznev, I. Yu. Geints, A. A. Ionin, and A. A. Zemlyanov, "Energy limit for linear-to-nonlinear femtosecond laser pulse focusing in air", Opt. Laser Technol., Vol. 143, No. 107377 (2021).

[170] J. Sun and P. Longtin, "Effects of a gas medium on ultrafast laser beam delivery and materials processing", J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 21, No. 5, pp. 1081-1088 (2004).

[171] S. R. Vatsya, C. Li, and K. Nikumb, "Surface profile of material ablated with high-power lasers in ambient air medium", J. Appl. Phys., Vol. 97, No. 034912 (2005).

[172] C. Li, S. R. Vatsya, and S. K. Nikumb, "Effect of plasma on ultrashort pulse laser material processing", J. Laser Appl., Vol. 19, No. 1, pp. 26-31 (2007).

[173] R. Yamada, W. Komatsubara, H. Sakurai, K. Konishi, N. Mio, J. Yumoto, and M. Kuwata-Gonokami, "Simulation of nonlinear propagation of femtosecond laser pulses in air for quantitative prediction of the ablation crater shape", Opt. Exp., Vol. 31, No. 5, pp. 7363-7382 (2023).

[174] S. Lei, G. Yang, X. Wang, S. Chen, A. Prieb, and J. Ma, "High energy femtosecond laser peening of 2024 Aluminum alloy", Procedia CIRP, Vol. 74, pp. 357-361 (2018).

[175] F. Pickhardt, J. S. Hoppius, and E. L. Gurevich, "Femtosecond laser shock peening of galvanized stainless steel", Procedia CIRP, Vol. 74, pp. 320-323 (2018).

[176] N. Maharjan, Z. Lin, D. T. Ardi, L. Ji, and M. Hong, "Laser peening of 420 martensitic stainless steel using ultrashort laser pulses", Procedia CIRP, Vol. 87, pp. 279-284 (2020).

第 2 章　大気の非線形光学現象を考慮したレーザ伝搬計算方法

2-1　緒言

通常、レーザの伝搬や集光は線形応答の範囲内で行われ、非線形光学現象は影響を与えない。しかしながら、超短パルスレーザは非常に強力な光電場を持つため、光パルスが媒質中を伝搬する際には非線形光学現象が影響を及ぼし、光の伝搬や相互作用に特有の振る舞いが生じることが知られている[1]。超短パルスレーザ加工は加工対象物に到達する強度やフルエンスが駆動力であるため、集光特性の明確な可視化が極めて重要である。非線形光学現象がレーザ伝搬に与える影響を理解するためには、まず線形伝搬現象を理解しておくことが不可欠である。本章では、基本的な光の線形伝搬の支配方程式について説明した後、非線形光学効果を組み込む方法について説明する。次に、大気の電離論と電離率の計算方法について説明し、最後に、一般的なガウシアン分布を持つレーザにおける集光特性を紹介する。

2-2　真空中のレーザ伝搬理論

レーザなどの光は波動の性質を持ち、エネルギーや情報が媒質を通じて伝搬する。水面の波紋や音波もまた波の典型的な例である。各波の性質や振動の特性に応じて、対応する波動方程式が構築されており、これによって伝搬現象を物理的に理解することが可能である。光や電磁波の伝搬は、以下に示すマクスウェル方程式から導かれる[2-4]。

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \tag{2.1a}$$

$$c^2 \nabla \times \vec{B} = \frac{\vec{J}}{\epsilon_0} + \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}, \tag{2.1b}$$

$$\nabla \cdot \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0}, \tag{2.1c}$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0, \tag{2.1d}$$

$\vec{E}$：電場（V/m）、$\vec{B}$：磁束密度（T）を表す。また、c：真空中の光速（m/s）、ϵ_0：真空の誘電率（F/m）、$\vec{J}$：電流密度（A/m^2）、ρ：媒質の電荷密度（C/m^3）を表す。大気などの電気的に中性な媒質（誘電体）中の電磁波の伝搬では、自由な電荷密度や電流は存在せず、電流密度$\vec{J}$や電荷密度ρは分極$\vec{P}$（C/m^2）のみによって記述される。分極が生じることで、誘電体には分極電荷ρ_Pが生じ、

$$\rho_P = -\nabla \cdot \vec{P} \tag{2.2}$$

電流密度と電荷密度の間には電荷の保存則が成り立つため、分極電流密度$\vec{J}_P$は分極電荷によって表される。

$$\nabla \cdot \vec{J}_P = -\frac{\partial \rho_P}{\partial t} \tag{2.3}$$

また、分極電流は(2.2)式を(2.3)式に代入し、演算子の順序を入れ替えることで、

$$\vec{J}_P = \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \tag{2.4}$$

(2.2)、(2.4)式をそれぞれ(2.1c)、(2.1b)式に代入することで、分極が生じる媒質中のマクスウェル方程式を導出する。さらに、電場$\vec{E}$と分極$\vec{P}$をまとめて電束密度$\vec{D}$ (C/m^2) として次のように定義する。

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \tag{2.5}$$

以上より、マクスウェル方程式は次のように簡潔に表される。

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \tag{2.6a}$$

$$\nabla \times \vec{B} = \mu_0 \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}, \tag{2.6b}$$

$$\nabla \cdot \vec{D} = 0, \tag{2.6c}$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0, \tag{2.6d}$$

これらの方程式から、電磁波の波動方程式を導くことができる。(2.6a)式の両辺に回転を作用させると、

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\nabla \times \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \tag{2.7}$$

右辺の微分演算子と回転の順序を入れ替え、

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial}{\partial t}\left(\nabla \times \vec{B}\right) \tag{2.8}$$

右辺に(2.6b)式を代入し、

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} \tag{2.9}$$

左辺にベクトルの恒等式 $\nabla \times \nabla \times \vec{E} = \nabla\left(\nabla \cdot \vec{E}\right) - \nabla^2 \vec{E}$ を代入し、

$$\nabla\left(\nabla \cdot \vec{E}\right) - \nabla^2 \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} \tag{2.10}$$

真空中では $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E}$ であるため、(2.6c)式において、$\nabla \cdot \vec{E} = 0$ が成り立つ。これを代入すると、

$$\nabla^2 \vec{E} - \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} = 0 \tag{2.11}$$

$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E}$ を用いて書き直すと、

$$\nabla^2\vec{E} - \epsilon_0\mu_0\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} = 0 \tag{2.12}$$

さらに光速の定義 $c = 1/\sqrt{\epsilon_0\mu_0}$ を用いて、

$$\nabla^2\vec{E} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} = 0 \tag{2.13}$$

(2.13)式は真空中の電磁波の波動方程式である。このように、電磁波の波動方程式は空間と時間の偏微分から成る偏微分方程式である。z方向の一次元の波動方程式として考えると、

$$\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} = 0 \tag{2.14}$$

この偏微分方程式の一般解はダランベールの解として知られ、次式のようになる。

$$\vec{E}(z,t) = F(z-ct) + G(z+ct) \tag{2.15}$$

ただし、FとGは 2 階微分可能な任意の関数である。関数Fは時間経過に伴いz方向に速さcで移動する進行波を、関数Gは時間経過に伴い$-z$方向に速さcで移動する後退波を表す。一般解は進行波と後退波の重ね合わせの形で表される。反射などの伴わない電磁波の伝搬においては進行波のみを考慮してもよい。次の正弦波は波動方程式に解を満たす。

$$\vec{E}(z,t) = E_0\, cos(kz - \omega t + \phi_0) \tag{2.16}$$

E_0：電場振幅、k：波数、ω：周波数、ϕ_0：初期位相分布を表す。真空中の波数kと周波数ωの間には光速cを用いて次のような関係が成り立つ。

$$k = \frac{\omega}{c} \tag{2.17}$$

以上が真空中での電磁波の波動方程式の基本的な形である。

2-3　線形分極を考慮したレーザ伝搬理論

次に、線形分極が生じる条件での波動方程式を導出する。線形分極$\vec{P_L}$が生じるとき、分極は電場に対して比例関係にある。その比例定数は真空の誘電率ϵ_0と線形電気感受率$\chi^{(1)}$から定義され、

$$\vec{P_L} = \epsilon_0\chi^{(1)}\vec{E} \tag{2.18}$$

これを(2.5)式に代入すると、

$$\vec{D} = \epsilon_0\left(1+\chi^{(1)}\right)\vec{E} \tag{2.19}$$

線形電気感受率が一定とすると、新たに媒質の誘電率ϵを定義することができる。

$$\vec{D} = \epsilon\vec{E} \tag{2.20}$$

$$\epsilon = \epsilon_0\left(1 + \chi^{(1)}\right) \tag{2.21}$$

これを(2.6c)式に代入することにより、

$$\nabla \cdot \epsilon\vec{E} = 0 \tag{2.22}$$

$$\epsilon\nabla \cdot \vec{E} + \vec{E}\nabla \cdot \epsilon = 0 \tag{2.23}$$

線形分極の範囲内では、媒質の誘電率は場所によらず一定であるため、$\nabla \cdot \epsilon = 0$ が成り立つ。したがって、真空中の場合と同様に、$\nabla \cdot \vec{E} = 0$ が成り立ち、(2.11)式が成り立つ。これにより、線形分極を考慮した電磁波の波動方程式を導くことができる。

$$\nabla^2\vec{E} - \epsilon_0\mu_0\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2\vec{P}_L}{\partial t^2} \tag{2.24}$$

右辺に(2.18)式を代入し、

$$\nabla^2\vec{E} - \frac{\left(1 + \chi^{(1)}\right)}{c^2}\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} = 0 \tag{2.25}$$

(2.25)式は媒質中において線形分極までを考慮した電磁波の波動方程式である。電磁波の初期条件が理想的なガウシアンレーザなどの場合、伝搬を記述する一般解を導出することが可能である。真空中の光の伝搬を表す(2.14)式と比較すると、電磁波の速度が光速cからvに変化したとみなすことができる。

$$\nabla^2\vec{E} - \frac{1}{v^2}\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} = 0 \tag{2.26}$$

このときの電磁波の速度vは光速cと線形電気感受率$\chi^{(1)}$を用いて、次のように表される。

$$v = \frac{c}{\sqrt{1 + \chi^{(1)}}} \tag{2.27}$$

光速cと媒質中の電磁波の速度vの比を屈折率n_0として定義すると、

$$n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}} \tag{2.28}$$

$$v = \frac{c}{n_0} \tag{2.29}$$

線形電気感受率$\chi^{(1)}$は媒質に固有の値であるため、線形分極の範囲内では屈折率n_0は一定である。したがって、これらを満たす伝搬方程式の解は(2.16)式と同様に表される。ただし、波数kと周波数ωの間には光速c、屈折率n_0を用いて次のような関係が成り立つ。

$$k_0 = n_0\frac{\omega}{c} \tag{2.30}$$

このように、媒質中の波の伝搬には媒質に固有の屈折率、もしくは線形電気感受率が関与する。ここで、屈折率に対して制約を設けていないため、これらは屈折率が複素数であっても成立する。波の伝搬においては、物理量を複素表示することで、現象をより詳細に記述することができる。例えば、(2.18)式では、線形分極$\overrightarrow{P_L}$が定数$\epsilon_0\chi^{(1)}$で電場$\vec{E}$に比例する形で与えているが、比例定数が実数である場合、分極は電場に対して瞬時に応答することを意味する。しかし、実際には電子やイオンなどの荷電粒子には質量があるため、電場に対して瞬時に応答できず、時間的な遅れが生じるはずである。電場や分極を複素表示で与えることにより、この時間的な遅れを簡単に表現することができる。例えば、実数からなる電場を次のように複素表示できる。

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t) \tag{2.31}$$

$$E(t) = \frac{1}{2} E_0\, exp(-i\omega t) + c.c. \tag{2.32}$$

c.c.は複素共役（complex conjugate）を表す。同様に、線形分極P_Lに電場に対する時間的な遅れϕが生じると仮定すると、

$$P_L(t) = P_0 \cos(\omega t - \phi) \tag{2.33}$$

$$P_L(t) = \frac{1}{2} P_0\, exp(-i\omega t)\, exp(i\phi) + c.c. \tag{2.34}$$

複素表示により、時間的な遅延は位相差ϕを付与する項$exp(i\phi)$を積するだけの簡潔な表示となる。(2.18)式より、線形分極P_Lと電場$\vec{E}$は定数$\epsilon_0\chi^{(1)}$で比例関係にあるため、線形電気感受率$\chi^{(1)}$は$exp(i\phi)$を含む複素数となり、屈折率も複素数となる。これらは古典力学の考えに基づき示すことができる。Fig. 2.1 に示すようなローレンツモデル（荷電粒子がばねにつながれたモデル）を用いて、電磁波に対する分極応答を記述する。このモデルでは、電荷q、質量mの荷電粒子がフックの法則にしたがうばね（ばね定数K、減衰定数γ）につながれている。

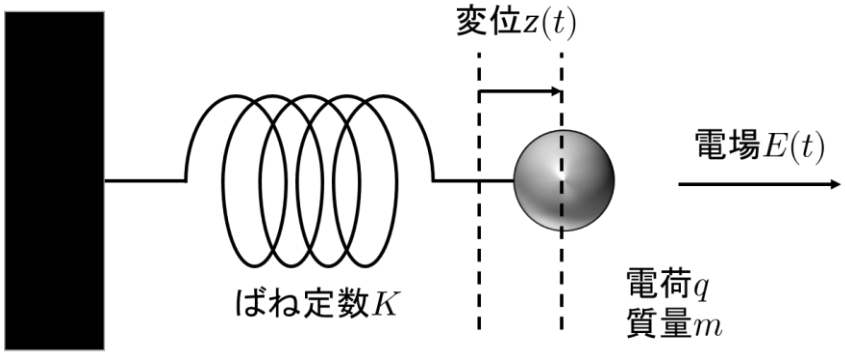


Fig. 2.1 Lorenz model describing spring oscillations.

電場$E(t)$が印加されたときの荷電粒子の変位$z(t)$に関する運動方程式は、次のようになる。

$$m\frac{d^2z}{dt^2} + m\gamma\frac{dz}{dt} + Kz = qE(t) \tag{2.35}$$

電場$E(t)$は(2.32)式で表されるものとする。変位$z(t)$が電場と同じ形で与えられると仮定すると、

$$z(t) = \frac{1}{2} z_c \, exp(-i\omega t) + c.c. \tag{2.36}$$

媒質に誘起される分極は荷電粒子の変位から表される。単位体積中に同種の荷電粒子がN個存在するとき、誘起される分極はN倍であるため、

$$P_L(t) = Nqz(t) \tag{2.37}$$

(2.18)式より、

$$\epsilon_0 \chi^{(1)} E(t) = Nqz(t) \tag{2.38}$$

$$\chi^{(1)} = \frac{Nq}{\epsilon_0 E(t)} z(t) \tag{2.39}$$

以上より、線形電気感受率は荷電粒子の変位から求められる。(2.32)式、(2.36)式を運動方程式に代入することで、

$$\left(-\frac{1}{2} m\omega^2 z_c - i\frac{1}{2} m\gamma\omega z_c + \frac{1}{2} K z_c\right) exp(-i\omega t) = \frac{1}{2} qE_0 \, exp(-i\omega t) \tag{2.40}$$

複素共役は同様に解かれるが、数式展開上は省略する。z_cを求めると、

$$z_c = \frac{qE_0}{m} \frac{1}{\frac{K}{m} - \omega^2 - i\gamma\omega} \tag{2.41}$$

ここで、振動子の共鳴周波数ω_0として次のように定義すると、

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{K}{m}} \tag{2.42}$$

$$z_c = \frac{qE_0}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \tag{2.43}$$

実数部分と虚数部分を分離し、

$$z_c = \frac{qE_0}{m} \left\{ \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2} + i \frac{\gamma\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2} \right\} \tag{2.44}$$

この複素数を振幅成分と位相成分に分離して表示すると、

$$z_c = \frac{qE_0}{m} \frac{1}{\sqrt{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2}} exp(i\phi) \tag{2.45}$$

位相差ϕの満たす条件は、次の通りである。

$$cos\,\phi = \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{\sqrt{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2}} \tag{2.46}$$

$$sin\,\phi = \frac{\gamma\omega}{\sqrt{(\omega_0^2-\omega^2)^2+\gamma^2\omega^2}} \tag{2.47}$$

$$tan\,\phi = \frac{\gamma\omega}{\omega_0^2-\omega^2} \tag{2.48}$$

以上より、荷電粒子に対して電場振動が印加されるとき、荷電粒子の変位は位相遅れを生じることが示された。線形電気感受率は荷電粒子の変位から求められるため、(2.32)、(2.39)式より、

$$\chi^{(1)} = \frac{Nq^2}{m\epsilon_0}\frac{1}{\sqrt{(\omega_0^2-\omega^2)^2+\gamma^2\omega^2}}exp(i\phi) \tag{2.49}$$

したがって、線形電気感受率$\chi^{(1)}$は入力電場に対する分極応答の大きさと位相遅れを表す複素量である。(2.49)式からわかるように、電磁波の周波数ωが媒質の共鳴周波数ω_0に近いとき、電気感受率の絶対値$|\chi^{(1)}|$は大きくなる。(2.48)式からは、位相遅れϕは、$\omega \ll \omega_0$のときには 0、$\omega \sim \omega_0$のときにはπ/2、$\omega \gg \omega_0$のときにはπとなることがわかる。そのため、電気感受率$\chi^{(1)}$は電磁波の周波数（電磁波の波長）に大きく依存する。

最後に、複素量である電気感受率$\chi^{(1)}$の物理的意味を説明する。(2.28)式より、屈折率は電気感受率を用いて表される。新たに複素屈折率$\tilde{n}$として定義すると、

$$\tilde{n} = \sqrt{1+\chi^{(1)}} \tag{2.50}$$

$$\tilde{n} = n + i\kappa \tag{2.51}$$

光の伝搬を表す解である(2.16)式を複素表示することにより、次式を得る。

$$E(z,t) = \frac{1}{2}E_0\,exp\{i(kz-\omega t)\} + c.c. \tag{2.52}$$

ここで、初期位相分布もE_0に含め、複素電場振幅とする。波数kは(2.30)式より屈折率に依存するため、複素数となり、次のように表される。

$$\tilde{k} = \tilde{n}\frac{\omega}{c} \tag{2.53}$$

(2.51)、(2.53)式を(2.52)式に代入することにより、

$$E(z,t) = \frac{1}{2}E_0\,exp\left[i\left\{\frac{\omega}{c}(n+i\kappa)z-\omega t\right\}\right] + c.c. \tag{2.54}$$

$$E(z) = \frac{1}{2}E_0\,exp\left\{i\frac{n\omega}{c}\left(z-\frac{c}{n}t\right)\right\}exp\left(-\frac{\omega}{c}\kappa z\right) + c.c. \tag{2.55}$$

(2.55)式は、媒質中の波動方程式から導かれる伝搬解であり、これにより、媒質中の光は位相速度c/nで伝搬し、κで決まる割合で電場の複素振幅の絶対値が指数関数的に減少する。すなわち、電場が減衰することがわかる。そのため、複素屈折率のnを屈折率、κを消衰係数と呼ぶ。これにより、

(1.1)式のランベルトベールの法則を導くことができる。以上、線形分極を考慮した媒質中の光の伝搬現象を説明した。また、電気感受率$\chi^{(1)}$が屈折率や減衰を決定する重要な複素量であることを説明した。

2-4　非線形分極を考慮したレーザ伝搬理論

非線形分極を考慮した電磁波の波動方程式を導出する。分極Pが線形分極と非線形分極を生じるとき、次式のように線形成分P_Lと非線形成分P_{NL}に分けて取り扱うことができる。

$$P = P_L + P_{NL} \tag{2.56}$$

(2.18)式で線形電気感受率を用いて線形分極を定義したように、n次の非線形分極P_{NL}をn次の電気感受率$\chi^{(n)}$を用いて定義すると、

$$P_{NL} = \epsilon_0\chi^{(2)}E^2 + \epsilon_0\chi^{(3)}E^3 + \epsilon_0\chi^{(4)}E^4 + \cdots \tag{2.57}$$

これらは分極Pを電場Eに対してテイラー展開したことに等しい。

$$P = \epsilon_0\chi^{(1)}E + \epsilon_0\chi^{(2)}E^2 + \epsilon_0\chi^{(3)}E^3 + \epsilon_0\chi^{(4)}E^4 + \cdots \tag{2.58}$$

非線形分極が生じる条件下では媒質の誘電率が一定でないため、(2.23)式において$\nabla\cdot\vec{E} = 0$とはできず、(2.10)式の左辺第一項$\nabla(\nabla\cdot E)$は無視できない。

$$\nabla^2 E - \frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} + \nabla(\nabla\cdot E) \tag{2.59}$$

したがって、波動方程式は単純ではない。しかしながら、非線形分極が下記の近似式を満たし、かつ近軸近似を満たす場合には、近似的に$\nabla\cdot\vec{E} \approx 0$とすることができる[5-7]。

$$\frac{|P_{NL}|}{\epsilon_0 n^2} \ll |E| \tag{2.60}$$

少なくとも超短パルスレーザ加工で扱うレーザ強度の範囲内（10^{15} W/cm^{2}以下）では、後述する大気の光カー効果や大気の電離による非線形分極は(2.60)式の近似式を満たす。近軸近似は、伝搬方向に垂直な方向の波数ベクトル$k_\perp$が波数ベクトルkより十分に小さい場合に成り立つ。

$$k_\perp \ll k \tag{2.61}$$

超短パルスレーザ加工でよく用いられる開口数の範囲内（NA < 0.1）では、一般に近軸近似を用いて良い。したがって、一般的な超短パルスレーザ加工分野では、真空中の光伝搬や線形分極を考慮した光伝搬と同様に$\nabla(\nabla\cdot E)$の項を無視することができ、

$$\nabla^2 E - \frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \tag{2.62}$$

このように、非線形分極を考慮した波動方程式は、線形分極を考慮した波動方程式の右辺に非線形

分極の項が加わった形になる。電流と分極は(2.4)式で自由に書き換えられるため、必要に応じて電流項を追加することができる。

$$\nabla^2 E - \frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial J}{\partial t} \tag{2.63}$$

また、透磁率を光速と真空の誘電率を用いて書き換えると、それぞれ次のように表される。

$$\nabla^2 E - \frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2\epsilon_0}\frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \tag{2.64}$$

$$\nabla^2 E - \frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2\epsilon_0}\frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} + \frac{1}{c^2\epsilon_0}\frac{\partial J}{\partial t} \tag{2.65}$$

以上、非線形分極を考慮した媒質中の光の波動方程式の導出が説明された。

2-5　非線形伝搬方程式の近似手法

2-5-1　パルス領域座標系における波動方程式

座標変換や近似手法を用いて、これらの波動方程式を簡略化した非線形シュレディンガー方程式（NLSE: Non-linear Schrödinger equation）を導出する。非線形分極を考慮した波動方程式である(2.64)式において、(x, y, z)空間内を伝搬する電磁波の中で、主にz方向に伝搬する電磁波を考える。(2.64)式の波動方程式において、(x, y, z)空間であることを明示すると、

$$\nabla^2 E = \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}\right) E \tag{2.66}$$

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}\right) E - \frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2\epsilon_0}\frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \tag{2.67}$$

パルスレーザの振幅は一定でなく、時間変化する包絡線であるため、(2.16)のような定数の振幅と搬送波の積で単純に表現できない。このような場合、包絡線を$\mathcal{E}$として定義し、次のように表すことが適切である。

$$E(x, y, z, t) = \mathcal{E}(x, y, z, t)\, exp\{i(k_0 z - \omega_0 t)\} \tag{2.68}$$

これは、特定の中心波数k_0および中心周波数ω_0における伝搬解である。パルスレーザは時間幅に応じて波長広がりを持ち、この波長の情報はパルスの包絡線の複素振幅に含まれる。さらに、包絡線は時間とともに伝搬方向に移動するため、パルスとともに移動するパルス領域座標系(x, y, ξ, τ)を導入することは有意義である。この座標系の模式図を Fig. 2.2 に示す。通常の(x, y, z, t)座標系では、青色の領域全体を常に計算する必要があるが、パルス領域座標系(x, y, ξ, τ)では、オレンジ色のパルスに追随する領域のみを計算対象とすることで、計算コストを大幅に削減できる。(z, t)座標から(ξ, τ)座標への変換は、パルス中心が群速度$v_g(\omega)$で移動すると仮定した場合に行うことができる。

$$\begin{cases} \xi = z \\ \tau = t - \dfrac{z}{v_g(\omega)} \end{cases} \tag{2.69}$$

微分演算子の変換は次の通りである。

$$\begin{cases} \dfrac{\partial}{\partial z} = \dfrac{\partial \xi}{\partial z}\dfrac{\partial}{\partial \xi} + \dfrac{\partial \tau}{\partial z}\dfrac{\partial}{\partial \tau} = 1 \times \dfrac{\partial}{\partial \xi} + \left(-\dfrac{1}{v_g(\omega)}\right) \times \dfrac{\partial}{\partial \tau} = \dfrac{\partial}{\partial \xi} - \dfrac{1}{v_g(\omega)}\dfrac{\partial}{\partial \tau} \\ \dfrac{\partial}{\partial t} = \dfrac{\partial \xi}{\partial t}\dfrac{\partial}{\partial \xi} + \dfrac{\partial \tau}{\partial t}\dfrac{\partial}{\partial \tau} = 0 \times \dfrac{\partial}{\partial \xi} + 1 \times \dfrac{\partial}{\partial \tau} = \dfrac{\partial}{\partial \tau} \end{cases} \tag{2.70}$$

二階の微分演算子の変換は次の通りである。

$$\begin{cases} \dfrac{\partial^2}{\partial z^2} = \left(\dfrac{\partial}{\partial \xi} - \dfrac{1}{v_g(\omega)}\dfrac{\partial}{\partial \tau}\right)\left(\dfrac{\partial}{\partial \xi} - \dfrac{1}{v_g(\omega)}\dfrac{\partial}{\partial \tau}\right) = \dfrac{\partial^2}{\partial \xi^2} - \dfrac{2}{v_g(\omega)}\dfrac{\partial^2}{\partial \xi \partial \tau} + \dfrac{1}{{v_g}^2(\omega)}\dfrac{\partial^2}{\partial \tau^2} \\ \dfrac{\partial^2}{\partial t^2} = \dfrac{\partial^2}{\partial \tau^2} \end{cases} \tag{2.71}$$

これらの座標変換を(2.67)式に適用すると、

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)E + \left(\frac{\partial^2}{\partial \xi^2} - \frac{2}{v_g(\omega)}\frac{\partial^2}{\partial \xi \partial \tau} + \frac{1}{{v_g}^2(\omega)}\frac{\partial^2}{\partial \tau^2}\right)E - \frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial \tau^2} = \frac{1}{c^2\epsilon_0}\frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial \tau^2} \tag{2.72}$$

ここで、EやP_{NL}は(x, y, ξ, τ)の関数である。伝搬方向のξ演算子を左辺にまとめ、式を整理すると、

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \xi^2} - \frac{2}{v_g(\omega)}\frac{\partial^2 E}{\partial \xi \partial \tau} = -\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)E + \left\{\frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2} - \frac{1}{{v_g}^2(\omega)}\right\}\frac{\partial^2 E}{\partial \tau^2} + \frac{1}{c^2\epsilon_0}\frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial \tau^2} \tag{2.73}$$

以上より、パルス領域座標系での波動方程式が示された。

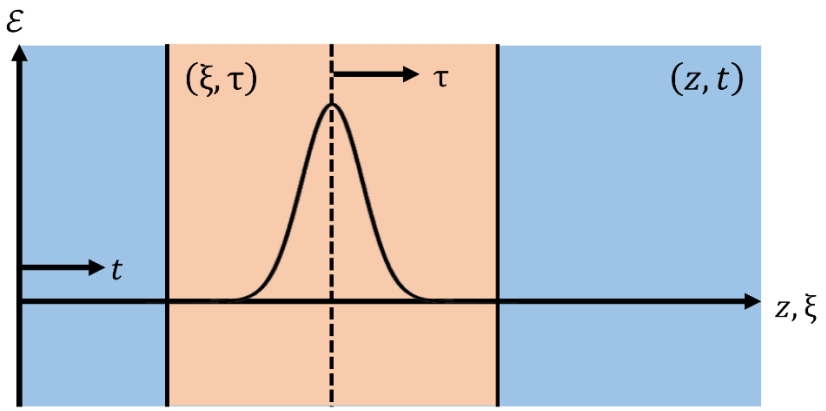


Fig. 2.2 Schematic diagram showing a change of reference frame from the laboratory to the pulse local frame $(z, t) \rightarrow (\xi, \tau)$, where τ denotes the retarded time in the pulse frame:

ここで、位相速度と群速度について説明する。電気感受率は周波数に依存するため、ある周波数スペクトルが存在する場合、伝搬の様子は異なるはずである。ある周波数スペクトル幅Δωにおいて、十分に細かい波の重ね合わせを考えると、ある波uは次のように表される。

$$u = \int_{k_0-\Delta k}^{k_0+\Delta k} cos\{kz - \omega(k)t\}\, dk \tag{2.74}$$

$$\Delta k = \frac{\Delta\omega}{c} \tag{2.75}$$

振幅は簡単のため一定とし省略した。ここで、角周波数を波数k_0の周りでテイラー展開すると、

$$\omega(k) = \omega(k_0) + (k - k_0)\left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0} + \frac{1}{2}(k - k_0)^2\left.\frac{d^2\omega}{dk^2}\right|_{k=k_0} + \cdots \tag{2.76}$$

ここで、まず右辺第三項以降の高次項を無視する場合を考えると、

$$\omega(k) = \omega(k_0) + (k - k_0)\left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0} \tag{2.77}$$

$$\begin{aligned} u &= \int_{k_0-\Delta k}^{k_0+\Delta k} cos\left\{kz - \left(\omega(k_0) + (k - k_0)\left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0}\right)t\right\}dk \\ &= \int_{k_0-\Delta k}^{k_0+\Delta k} cos\left\{\left(z - \left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0} t\right)k - \left(\omega(k_0) - k_0\left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0}\right)t\right\}dk \\ &= \frac{2}{x - \left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0} t} cos\{k_0 z - \omega(k_0)t\} sin\left(\Delta kz - \Delta k\left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0} t\right) \\ &= 2\Delta k\frac{sin\left\{\Delta k\left(z - \left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0} t\right)\right\}}{\Delta k\left(z - \left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0} t\right)} cos\left\{k_0\left(z - \frac{\omega(k_0)}{k_0}t\right)\right\} \end{aligned} \tag{2.78}$$

このように、異なる性質の二種類の波の積として表される。前半部分を振幅として与えると、

$$u = A(x,t)cos\{k_0 z - \omega(k_0)t\} \tag{2.79}$$

$$A(x,t) = 2\Delta k\frac{sin\left\{\Delta k\left(z - \left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0} t\right)\right\}}{\Delta k\left(z - \left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0} t\right)} = 2\Delta k\, sinc\left\{\Delta k\left(z - \left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0} t\right)\right\} \tag{2.80}$$

振幅関数$A(x,t)$は、x方向に sinc 関数の形状を持ち、t秒後に$\left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0}$だけ$x$方向に伝搬する。すなわち、これは波の包絡線である。包絡線が形成する波を波束と呼び、波束の伝達速度が群速度$v_g(\omega)$として定義される。すなわち、群速度$v_g(\omega)$は次のように示される。

$$v_g(\omega) = \left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0} \tag{2.81}$$

波uはこの包絡線内で搬送波によって振動しており、その波の速度を位相速度$v_p(\omega)$と呼ぶ。

$$v_p(\omega) = \frac{\omega(k_0)}{k_0} \tag{2.82}$$

このように、広い周波数スペクトルを持つ電磁波の伝搬においては位相速度と群速度の両方を考慮する必要がある。位相速度は屈折率に関連し、群速度は実際のエネルギーや情報の伝達に関連する。このような包絡線、搬送波、位相速度、群速度の模式図を Fig. 2.3 に示す。また、Fig. 2.4 に包絡線のΔk依存性を示す。ここで、Δkが大きくなるほど中心の包絡線の幅が狭くなる。このことは、波長スペクトルが大きくなるほど、波束の幅、すなわちパルス幅が短くなることを示している。具体的に、ある最短パルス幅T_0を持つ時間方向にガウシアン分布を持つパルスレーザを考えると、

$$U(T) = exp\left(-\frac{T^2}{T_0^2}\right) \tag{2.83}$$

これをフーリエ変換し、周波数領域で記述すると、

$$\hat{U}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} exp\left(-\frac{T^2}{T_0^2}\right) exp(i\omega T) dT \tag{2.84}$$

これはガウス積分を用いて解くことができ、

$$\int_{-\infty}^{\infty} exp(-ax^2 \pm bx) dx = \sqrt{\frac{\pi}{a}} exp\left(\frac{b^2}{4a}\right) \tag{2.85}$$

$$\hat{U}(\omega) = T_0\sqrt{\pi}\, exp\left(-\frac{T_0^2\omega^2}{4}\right) \tag{2.86}$$

周波数広がりを定義できるように変形すると、

$$\hat{U}(\omega) = T_0\sqrt{\pi}\, exp\left(-\frac{\omega^2}{\Delta\omega^2}\right) \tag{2.87}$$

$$\Delta\omega = \frac{2}{T_0} \tag{2.88}$$

すなわち、パルス幅の短いレーザほど、より広い周波数スペクトルを持つ。そのため、超短パルスレーザは広い周波数スペクトルを持ち、この性質から、次に説明する分散現象が無視できない。

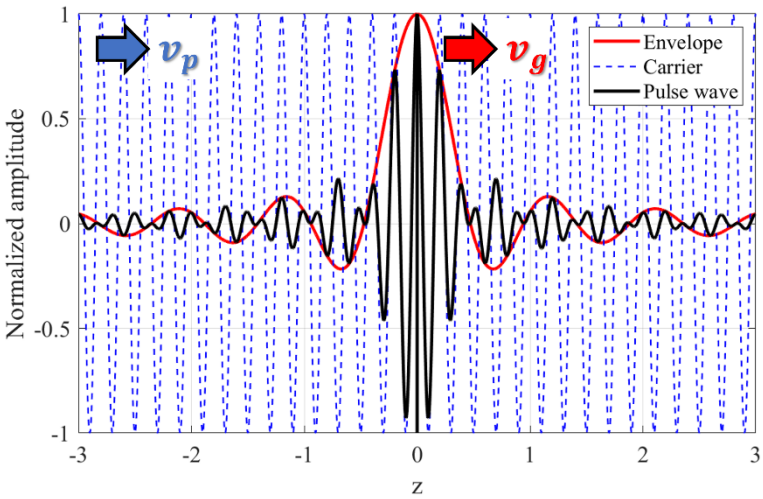


Fig. 2.3 Schematic diagram showing envelope, carrier wave, pulse wave, phase velocity, and group velocity.

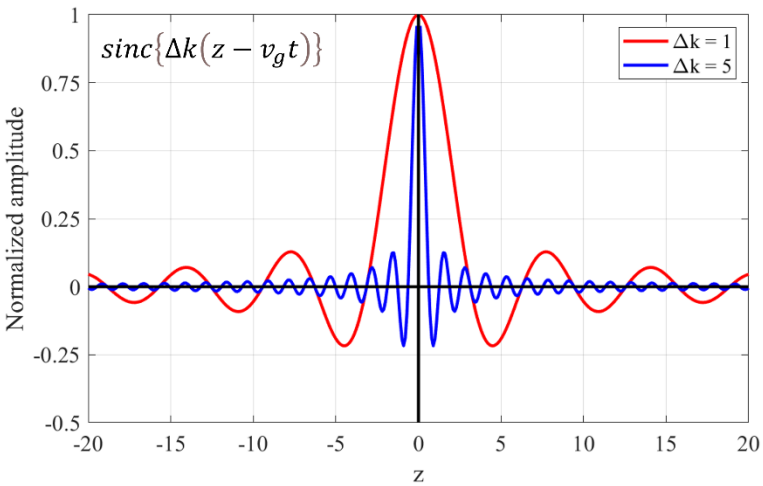


Fig. 2.4 Schematic diagram showing envelopeΔk-dependence.

これまでの議論では、波束が群速度で伝搬するため、波束が一定で崩れることがない。これは(2.77)式で高次項を無視した結果である。しかしながら、媒質中を伝搬する超短パルスレーザにおいては高次項を無視することができず、波束は伝搬とともに変化する現象が生じる。これを分散と呼ぶ。(2.77)式の近似がすべての角周波数$\omega(k)$について成り立つためには、$\omega(k)$がkの一次関数で表される必要がある。数式で表すと、

$$\omega(k) = vk \tag{2.89}$$

波数がゼロのとき角周波数もゼロであるため、切片はゼロである。vは任意の定数であり、角周波数と波数の比が一定であることを表す。

$$\frac{\omega(k)}{k} = constant \tag{2.90}$$

この式から位相速度と群速度を求めると、

$$v_p = \frac{\omega}{k} = v, \tag{2.91}$$

$$v_g = \frac{d\omega}{dk} = v \tag{2.92}$$

すなわち、位相速度と群速度が等しいときに限り、高次項を無視することができる。電磁波の進展において、(2.77)式を満たす条件は真空条件のみである。媒質中の電磁波の伝搬においては、周波数に応じて屈折率が変化するため、次のようになる。

$$\omega(k) = \frac{ck}{n(\omega)} \tag{2.93}$$

$$\frac{\omega(k)}{k} = \frac{c}{n(\omega)} \neq constant \tag{2.94}$$

角周波数と波数の比は角周波数に依存する関数であり、一定ではない。したがって、媒質中の電磁波の伝搬においては、高次項を無視することはできない。この場合、位相速度と群速度を求めると、

$$v_p = \frac{\omega(k)}{k} = \frac{c}{n(\omega)}, \tag{2.95}$$

$$v_g = \frac{d\omega}{dk} = \frac{1}{\frac{dk}{d\omega}} = \frac{1}{\frac{n(\omega)}{c} + \frac{\omega}{c}\frac{d}{d\omega}n(\omega)}$$
$$= \frac{\frac{c}{n(\omega)}}{1 + \frac{\omega}{n(\omega)}\frac{dn(\omega)}{d\omega}} = \frac{v_p}{1 + \frac{\omega}{n(\omega)}\frac{dn(\omega)}{d\omega}} \tag{2.96}$$

位相速度と群速度はどちらも角周波数に依存する。通常、透明な媒質では、可視光の周波数領域において、周波数が大きくなるほど屈折率$n(\omega)$も大きくなる。すなわち、波長が短いほど屈折率が高くなる。このような状況では、屈折率の角周波数微分は正の値を持ち、周波数が大きな電磁波ほど群速度が小さくなる。すなわち、波長が短いほど群速度が小さく、波長が長いほど群速度が大きいことを示す。この結果、電磁波がある波長スペクトルを持つ場合、そのスペクトル内の長波長成分が先行して伝搬し、短波長成分が遅れて伝搬する現象が観察される。このような波束の時間的変化を示す現象が分散、または群速度分散と呼ばれる。また、時間的に周波数成分が変化するパルスはチャープパルスと呼ばれる。以上の議論から、角周波数のテイラー展開において、(2.76)式の右辺第三項以降を無視することはできない。ただし、一般的には右辺第三項を考慮することで、十分な精度で計算が可能であるとされている。群速度分散が顕著な場合には、時折右辺第四項も考慮される。右辺第二項の一階微分項は群速度を示し、右辺第三項の二階微分項は群速度分散パラメータであり、これらは実験的に求められる重要な物理量である。

2-5-2　周波数領域表示した波動方程式

(2.73)式は周波数領域で記述すると、時間微分項を省略でき、式が簡潔になる。そのため、周波数領域での表現方法について説明する。時間軸と周波数領域の変換にはフーリエ変換が用いられる。任意のベクトル場$\vec{X}(r,t)$に対するフーリエ変換とその逆フーリエ変換は次のように定義される。

$$\mathcal{F}\left[\vec{X}(r,t)\right] = \hat{X}(k,\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{X}(r,t) e^{-i(kr-\omega t)} d^3r dt \tag{2.97}$$

$$\mathcal{F}^{-1}\left[\hat{X}(k,\omega)\right] = \vec{X}(r,t) = \frac{1}{(2\pi)^4}\int_{-\infty}^{\infty} \hat{X}(k,\omega) e^{i(kr-\omega t)} d^3k d\omega \tag{2.98}$$

今回、空間領域を波数領域で記述する必要はないため、時間軸を周波数領域に変換すればよいが、他との整合性を保つため(2.97)式、(2.98)式に沿う形でフーリエ変換、逆フーリエ変換を定義する。

$$\mathcal{F}\left[\vec{X}(r,t)\right] = \hat{X}(r,\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{X}(r,t) e^{i\omega t} dt \tag{2.99}$$

$$\mathcal{F}^{-1}\left[\hat{X}(r,\omega)\right] = \vec{X}(r,t) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} \hat{X}(r,\omega) e^{-i\omega t} d\omega \tag{2.100}$$

一般的に用いられるフーリエ変換とは周波数の符号が正負逆であることに注意が必要である。マクスウェル方程式をフーリエ変換する際に必要な定理を次式に示す。この定理も通常の定理とは周波

数の符号が正負逆である。

$$\mathcal{F}\left[\frac{\partial \vec{X}(r,t)}{\partial t}\right] = -i\omega\hat{X}(r,\omega) \tag{2.101}$$

証明は単純に、(2.100)式の両辺を時間微分すると、

$$\frac{\partial \vec{X}(r,t)}{\partial t} = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{\partial}{\partial t}\hat{X}(r,\omega)e^{-i\omega t}d\omega$$

$$= \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}(-i\omega)\hat{X}(r,\omega)e^{-i\omega t}d\omega \tag{2.102}$$

これより、

$$\mathcal{F}^{-1}\left[(-i\omega)\hat{X}(r,\omega)\right] = \frac{\partial \vec{X}(r,t)}{\partial t} \tag{2.103}$$

周波数領域での電場E、非線形分極P_{NL}をそれぞれ$\hat{E}$、$\hat{P}_{NL}$とすると、

$$\mathcal{F}\left[\frac{\partial E}{\partial \tau}\right] = -i\omega\hat{E}(x,y,\xi,\omega) \tag{2.104}$$

$$\mathcal{F}\left[\frac{\partial P_{NL}}{\partial \tau}\right] = -i\omega\hat{P}_{NL}(x,y,\xi,\omega) \tag{2.105}$$

これらを(2.73)式に代入し、

$$\frac{\partial^2\hat{E}}{\partial\xi^2} + 2i\frac{\omega}{v_g(\omega)}\frac{\partial\hat{E}}{\partial\xi} = -\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2}+\frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)\hat{E} - \left\{k^2(\omega) - \frac{\omega^2}{v_g^2(\omega)}\right\}\hat{E} - \frac{\omega^2}{c^2\epsilon_0}\hat{P}_{NL} \tag{2.106}$$

$$k(\omega) = \frac{\omega\sqrt{1+\chi^{(1)}(\omega)}}{c} \tag{2.107}$$

以上、周波数領域におけるパルス領域座標系での波動方程式が説明された。

2-5-3　パルス領域座標系における時間軸、周波数領域の包絡線伝搬方程式

電磁波の伝搬をより簡潔に記述するために、包絡線の伝搬を扱う。電磁波の伝搬では、電磁波の波長よりも十分に小さい微小空間での計算が必要であるが、包絡線の伝搬ではこの制約が緩和され、計算コストを削減できる。ただし、数サイクルのパルスなど、包絡線に対する振動箇所が重要な現象では包絡線の伝搬計算は適用できない。一般的に、超短パルスレーザ加工で用いられる数十フェムト秒以上のパルス幅では、10 以上の波が含まれるため、包絡線の伝搬による近似計算が適用可能である。(x,y,z,t)座標系での包絡線は(2.69)式で与えられている。パルス領域座標系(x,y,ξ,τ)での包絡線は、(2.69)式の関係を用いて(2.68)式を変形し、

$$E(x,y,\xi,\tau) = \mathcal{E}(x,y,\xi,\tau)\,exp\left[i\left\{k_0\xi - \omega_0\left(\tau + \frac{\xi}{v_g(\omega)}\right)\right\}\right] \tag{2.108}$$

(ξ,τ)で整理し、

$$E(x,y,\xi,\tau)=\mathcal{E}(x,y,\xi,\tau)\,exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right] \tag{2.109}$$

これらより、電磁波の伝搬方程式である(2.73)式に(2.86)式を代入すれば、包絡線伝搬方程式となる。微分項を事前に計算しておくと、次のようになる。

$$\begin{aligned}\frac{\partial E}{\partial\xi}&=exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial\xi}+i\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\mathcal{E}\\&=exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\left\{\frac{\partial}{\partial\xi}+i\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\right\}\mathcal{E}\end{aligned} \tag{2.110}$$

$$\begin{aligned}\frac{\partial E}{\partial\tau}&=exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial\tau}-i\omega_0\,exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\mathcal{E}\\&=exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\left(\frac{\partial}{\partial\tau}-i\omega_0\right)\mathcal{E}\end{aligned} \tag{2.111}$$

また、二階の微分項は次のようになる。

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2 E}{\partial\xi^2}&=exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\frac{\partial^2\mathcal{E}}{\partial\xi^2}+i\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial\xi}\\&\quad+i\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial\xi}\\&\quad+i\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\times i\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\mathcal{E}\\&=exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\left\{\frac{\partial^2}{\partial\xi^2}+2i\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\frac{\partial}{\partial\xi}-\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)^2\right\}\mathcal{E}\end{aligned} \tag{2.112}$$

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2 E}{\partial\tau^2}&=exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\frac{\partial^2\mathcal{E}}{\partial\tau^2}-i\omega_0\,exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial\tau}\\&-i\omega_0\,exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial\tau}-i\omega_0\times(-i\omega_0)\,exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\mathcal{E}\\&=exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\left(\frac{\partial^2}{\partial\tau^2}-2i\omega_0\frac{\partial}{\partial\tau}-{\omega_0}^2\right)\mathcal{E}\end{aligned} \tag{2.113}$$

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2 E}{\partial\xi\partial\tau}&=\frac{\partial}{\partial\xi}\left(\frac{\partial E}{\partial\tau}\right)=\frac{\partial}{\partial\xi}exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\left(\frac{\partial}{\partial\tau}-i\omega_0\right)\mathcal{E}\\&=exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\frac{\partial^2\mathcal{E}}{\partial\xi\partial\tau}+i\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial\tau}\\&-i\omega_0\,exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial\xi}-i\omega_0\times i\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\mathcal{E}\\&=exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right]\left\{\frac{\partial^2}{\partial\xi\partial\tau}+i\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\frac{\partial}{\partial\tau}-i\omega_0\frac{\partial}{\partial\xi}+\omega_0\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\right\}\mathcal{E}\end{aligned} \tag{2.114}$$

これらの包絡線への変換は、非線形分極項にも有効である。非線形分極P_{NL}の包絡線を$\mathcal{P}_{NL}$とし、

$$P_{NL}(x,y,\xi,\tau)=\mathcal{P}_{NL}(x,y,\xi,\tau)\,exp\left[i\left\{\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi-\omega_0\tau\right\}\right] \tag{2.115}$$

非線形分極の包絡線の二階微分項は(2.112)式と同様に計算でき、

$$\frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial \tau^2} = exp\left[i\left\{\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\xi - \omega_0\tau\right\}\right]\left(\frac{\partial^2}{\partial \tau^2} - 2i\omega_0\frac{\partial}{\partial \tau} - {\omega_0}^2\right)\mathcal{P}_{NL} \tag{2.116}$$

これらを(2.73)式に代入する。計算過程が複雑であるため、方程式の部分ごとに記述する。すべての項が共通で持つ指数部分は除去できる。

$$\begin{aligned}\left((2.73)式\textit{左辺}\right) &= \frac{\partial^2 E}{\partial \xi^2} - \frac{2}{v_g(\omega)}\frac{\partial^2 E}{\partial \xi \partial \tau} \\ &= \left\{\frac{\partial^2}{\partial \xi^2} + 2i\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\frac{\partial}{\partial \xi} - \left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)^2\right\}\mathcal{E} \\ &\quad - \frac{2}{v_g(\omega)}\left\{\frac{\partial^2}{\partial \xi \partial \tau} + i\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\frac{\partial}{\partial \tau} - i\omega_0\frac{\partial}{\partial \xi} + \omega_0\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\right\}\mathcal{E} \\ &= \frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial \xi^2} + \left(2ik_0 - \frac{2}{v_g(\omega)}\frac{\partial}{\partial \tau}\right)\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} - \left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\left\{\left(k_0 + \frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right) + \frac{2i}{v_g(\omega)}\frac{\partial}{\partial \tau}\right\}\mathcal{E}\end{aligned} \tag{2.117}$$

$$\begin{aligned}\left((2.73)式\textit{右辺第二項}\right) &= \left\{\frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2} - \frac{1}{{v_g}^2(\omega)}\right\}\frac{\partial^2 E}{\partial \tau^2} \\ &= \left\{\frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2} - \frac{1}{{v_g}^2(\omega)}\right\}\left(\frac{\partial^2}{\partial \tau^2} - 2i\omega_0\frac{\partial}{\partial \tau} - {\omega_0}^2\right)\mathcal{E}\end{aligned} \tag{2.118}$$

$$\left((2.73)式\textit{右辺三項}\right) = \frac{1}{c^2\epsilon_0}\frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial \tau^2} = \frac{1}{c^2\epsilon_0}\left(\frac{\partial^2}{\partial \tau^2} - 2i\omega_0\frac{\partial}{\partial \tau} - {\omega_0}^2\right)\mathcal{P}_{NL} \tag{2.119}$$

(2.73)式にこれらを代入し、ξ演算子を左辺にまとめると、

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial \xi^2} + \left(2ik_0 - \frac{2}{v_g(\omega)}\frac{\partial}{\partial \tau}\right)\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} &= -\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)\mathcal{E} + \left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\left\{\left(k_0 + \frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right) + \frac{2i}{v_g(\omega)}\frac{\partial}{\partial \tau}\right\}\mathcal{E} \\ &\quad + \left\{\frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2} - \frac{1}{{v_g}^2(\omega)}\right\}\left(\frac{\partial^2}{\partial \tau^2} - 2i\omega_0\frac{\partial}{\partial \tau} - {\omega_0}^2\right)\mathcal{E} + \frac{1}{c^2\epsilon_0}\left(\frac{\partial^2}{\partial \tau^2} - 2i\omega_0\frac{\partial}{\partial \tau} - {\omega_0}^2\right)\mathcal{P}_{NL}\end{aligned} \tag{2.120}$$

以上より、パルス領域座標系における時間軸の包絡線伝搬方程式が導出されたが、非常に複雑である。これらは周波数領域で導出すると簡潔な方程式が得られるため、周波数領域での導出についても説明する。(2.106)式を包絡線で記述するために、周波数領域における電場$\hat{E}$と包絡線$\hat{\mathcal{E}}$の関係を求める。(2.99)式の定義を用いて、(2.109)式の両辺を時間軸のみフーリエ変換し、

$$\hat{E}(x,y,\xi,\omega) = \int_{-\infty}^{\infty}\mathcal{E}(x,y,\xi,\tau)\,exp\left\{i\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right)\xi - i\omega_0\tau\right\}e^{i\omega\tau}d\tau \tag{2.121}$$

$$\hat{E}(x,y,\xi,\omega) = exp\left\{i\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right)\xi\right\}\int_{-\infty}^{\infty}\mathcal{E}(x,y,\xi,\tau)e^{i(\omega-\omega_0)\tau}d\tau \tag{2.122}$$

$$\hat{E}(x,y,\xi,\omega) = exp\left\{i\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right)\xi\right\}\hat{\mathcal{E}}(x,y,\xi,\omega-\omega_0) \tag{2.123}$$

これより、時間軸での包絡線$\mathcal{E}(x,y,\xi,\tau)$は、周波数領域では$\hat{\mathcal{E}}(x,y,\xi,\omega-\omega_0)$であり、周波数軸で平行移動を生じたものである。(2.106)式にこれを代入するために、微分項を事前に計算する。(2.123)式の両辺をξで微分し、

$$\frac{\partial \hat{E}}{\partial \xi} = exp\left\{i\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right)\xi\right\}\left\{\frac{\partial}{\partial \xi} + i\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right)\right\}\hat{\mathcal{E}}(x, y, \xi, \omega - \omega_0) \tag{2.124}$$

さらに両辺をξで微分し、

$$\frac{\partial^2 \hat{E}}{\partial \xi^2} = exp\left\{i\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right)\xi\right\}\left\{\frac{\partial^2}{\partial \xi^2} + 2i\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right)\frac{\partial}{\partial \xi} - \left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right)^2\right\}\hat{\mathcal{E}}(x, y, \xi, \omega - \omega_0) \tag{2.125}$$

(2.106)式にこれらを代入し、すべての項が共通で持つ指数部分は除去すると、

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2 \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi^2} + 2i\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right)\frac{\partial \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi} - \left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right)^2 \hat{\mathcal{E}} + 2i\frac{\omega}{v_g}\left\{\frac{\partial}{\partial \xi} + i\left(k_0 - \frac{\omega_0}{v_g}\right)\right\}\hat{\mathcal{E}} \\ = -\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)\hat{\mathcal{E}} - \left\{k^2(\omega) - \frac{\omega^2}{v_g^2(\omega)}\right\}\hat{\mathcal{E}} - \frac{\omega^2}{c^2\epsilon_0}\hat{\mathcal{P}}_{NL}\end{aligned} \tag{2.126}$$

ξ演算子を左辺にまとめ、整理すると、

$$\frac{\partial^2 \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi^2} + 2i\left(k_0 + \frac{\omega - \omega_0}{v_g}\right)\frac{\partial \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi} = -\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)\hat{\mathcal{E}} - \left\{k^2(\omega) - \left(k_0 + \frac{\omega - \omega_0}{v_g}\right)^2\right\}\hat{\mathcal{E}} - \frac{\omega^2}{c^2\epsilon_0}\hat{\mathcal{P}}_{NL} \tag{2.127}$$

ここで、$\kappa(\omega)$を次のように定義すると、

$$\kappa(\omega) = k_0 + \frac{\omega - \omega_0}{v_g} \tag{2.128}$$

$$\frac{\partial^2 \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi^2} + 2i\kappa(\omega)\frac{\partial \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi} = -\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)\hat{\mathcal{E}} - \{k^2(\omega) - \kappa^2(\omega)\}\hat{\mathcal{E}} - \frac{\omega^2}{c^2\epsilon_0}\hat{\mathcal{P}}_{NL} \tag{2.129}$$

これはパルス領域座標系における周波数領域の包絡線伝搬方程式であり、NEE（Nonlinear Envelope Equations）と呼ぶ。この方程式は時間軸でパルス領域座標系における包絡線伝搬方程式である(2.120)式をフーリエ変換することによっても導かれる。また、(2.99)、(2.100)式より、包絡線の時間軸と周波数領域の関係性は次のように定義されている。

$$\mathcal{F}^{-1}\left[\hat{\mathcal{E}}(r, \omega - \omega_0)\right] = \mathcal{E}(r, \tau) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\hat{\mathcal{E}}(r, \omega - \omega_0)e^{-i(\omega - \omega_0)\tau}d\omega \tag{2.130}$$

両辺を時間で微分し、

$$\begin{aligned}\frac{\partial \mathcal{E}(r, \tau)}{\partial \tau} = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{\partial}{\partial \tau}\hat{\mathcal{E}}(r, \omega - \omega_0)e^{-i(\omega - \omega_0)\tau}d\omega \\ = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\{-i(\omega - \omega_0)\}\hat{\mathcal{E}}(r, \omega - \omega_0)e^{-i(\omega - \omega_0)\tau}d\omega\end{aligned} \tag{2.131}$$

これより、

$$\mathcal{F}^{-1}\left[\{-i(\omega - \omega_0)\}\hat{\mathcal{E}}(r, \omega - \omega_0)\right] = \frac{\partial \mathcal{E}(r, \tau)}{\partial \tau} \tag{2.132}$$

これに注意して、(2.97)式をフーリエ変換すると、時間微分演算子に$\{-i(\omega - \omega_0)\}$を代入することに等しく、

$$\frac{\partial^2\hat{\mathcal{E}}}{\partial\xi^2}+\left(2ik_0-\frac{2}{v_g(\omega)}\{-i(\omega-\omega_0)\}\right)\frac{\partial\hat{\mathcal{E}}}{\partial\xi}=-\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2}+\frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)\hat{\mathcal{E}}$$
$$+\left(k_0-\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)\left\{\left(k_0+\frac{\omega_0}{v_g(\omega)}\right)+\frac{2i}{v_g(\omega)}\{-i(\omega-\omega_0)\}\right\}\hat{\mathcal{E}}$$
$$+\left\{\frac{\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2}-\frac{1}{{v_g}^2(\omega)}\right\}[\{-i(\omega-\omega_0)\}^2-2i\omega_0\{-i(\omega-\omega_0)\}-{\omega_0}^2]\hat{\mathcal{E}}$$
$$+\frac{1}{c^2\epsilon_0}[\{-i(\omega-\omega_0)\}^2-2i\omega_0\{-i(\omega-\omega_0)\}-{\omega_0}^2]\hat{\mathcal{P}}_{NL} \tag{2.133}$$

これを整理すると、同様に(2.129)式が得られる。このように、時間軸と周波数領域における伝搬方程式は同一であるが、周波数領域における記述は簡潔である。これ以降は周波数領域における伝搬方程式を取り扱う。

2-5-4　緩包絡線近似を適用した包絡線伝搬方程式

緩包絡線近似（SVEA: Slowly Varying Envelope Approximation）にて、(2.129)式の二階の微分項は無視し、さらに簡潔な表示にする。この近似は、左辺第一項の絶対値が第二項の絶対値に比べて十分に小さいことを利用する。

$$\left|\frac{\partial^2\hat{\mathcal{E}}}{\partial\xi^2}\right|\ll\left|2i\kappa(\omega)\frac{\partial\hat{\mathcal{E}}}{\partial\xi}\right| \tag{2.134}$$

ある量uが緩やかに変化しながら、z方向に伝搬している状況を考える。緩やかに変化しているというのは、波長程度の微小な距離Δzの伝搬に対して、その変化量Δuは元のuに対して十分に小さいという意味である。すなわち、

$$|\Delta u|\ll|u| \tag{2.135}$$

両辺を$\Delta\xi$で割ると、

$$\left|\frac{\Delta u}{\Delta\xi}\right|\ll\left|\frac{u}{\Delta\xi}\right| \tag{2.136}$$

ここで、$\Delta\xi$は波長程度、もしくは波長よりも短い距離であるから、

$$\left|\frac{\Delta u}{\Delta\xi}\right|\ll\left|\frac{u}{\Delta\xi}\right|\leq\left|\frac{u}{\lambda}\right|<\left|\frac{2\pi}{\lambda}u\right|=|k_0u| \tag{2.137}$$

ここで、ある量uを

$$u=\frac{\partial\hat{\mathcal{E}}}{\partial\xi} \tag{2.138}$$

と置き換えることにより、

$$\left|\frac{\partial^2\hat{\mathcal{E}}}{\partial\xi^2}\right|\ll\left|k_0\frac{\partial\hat{\mathcal{E}}}{\partial\xi}\right| \tag{2.139}$$

(2.128)式の$\kappa(\omega)$の定義より、$\kappa(\omega) \approx k_0$であるから、(2.134)式は満たされる。超短パルスレーザ加工のような開口数では、包絡線の変化は波長程度の伝搬に対して十分に小さいため、緩包絡線近似は満たされる。これより、(2.106)式の二階の微分項は無視することができ、次式のようになる。

$$\frac{\partial \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi} = \frac{i}{2\kappa(\omega)}\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)\hat{\mathcal{E}} + i\frac{k^2(\omega) - \kappa^2(\omega)}{2\kappa(\omega)}\hat{\mathcal{E}} + \frac{i}{2\kappa(\omega)}\frac{\omega^2}{c^2\epsilon_0}\hat{\mathcal{P}}_{NL} \tag{2.140}$$

(2.140)式を、NEE-MA（MA: Minimal Approximation）と呼ぶ。同様に、包絡線に対してではなく、電場の緩やかな変化に対する近似でも(2.83)式の二階の微分項を無視でき、SEWA（Slowly evolving wave approximation）と呼ぶ。

2-5-5　分散、群速度分散の近似

(2.140)式は、$\hat{\mathcal{E}}$のξ方向の伝搬に対して 3 つの項が寄与することを意味する。右辺第一項は回折、第二項は分散、第三項は非線形分極である。ここでは分散の近似方法について説明する。周波数に依存する波数ベクトル$k(\omega)$は、中心周波数ω_0のまわりでテイラー展開することにより、次のような定義となる。

$$k(\omega) = k_0 + (\omega - \omega_0)\left.\frac{dk}{d\omega}\right|_{\omega=\omega_0} + \frac{1}{2}(\omega - \omega_0)^2\left.\frac{d^2k}{d\omega^2}\right|_{\omega=\omega_0} + \cdots \tag{2.141}$$

群速度の定義(2.81)式より、

$$\left.\frac{dk}{d\omega}\right|_{\omega=\omega_0} = \frac{1}{\left.\frac{d\omega}{dk}\right|_{k=k_0}} = \frac{1}{v_g} \tag{2.142}$$

$$k(\omega) = k_0 + (\omega - \omega_0)\frac{1}{v_g} + \frac{1}{2}(\omega - \omega_0)^2\left.\frac{d^2k}{d\omega^2}\right|_{\omega=\omega_0} + \cdots \tag{2.143}$$

右辺第一項と第二項の和は(2.105)式の$\kappa(\omega)$の定義そのものであるから、それを左辺に移項すると、次のように表される。

$$k(\omega) - \kappa(\omega) = \frac{1}{2}(\omega - \omega_0)^2\left.\frac{d^2k}{d\omega^2}\right|_{\omega=\omega_0} + \cdots \tag{2.144}$$

このように、$k(\omega) - \kappa(\omega)$の項はテイラー展開の高次の項で表すことができる。簡潔に表すと、

$$k(\omega) - \kappa(\omega) = \sum_{l=2}^{+\infty}\frac{k_0^{(l)}}{l!}\Omega^l \tag{2.145}$$

$$k_0^{(l)} = \left.\frac{d^lk}{d\omega^l}\right|_{\omega=\omega_0} \tag{2.146}$$

$$\Omega = \omega - \omega_0 \tag{2.147}$$

ここで、(2.140)式の伝搬方程式の右辺第二項を次のように変形する。

$$k^2(\omega) - \kappa^2(\omega) = 2\kappa(\omega)\{k(\omega) - \kappa(\omega)\} + \{k(\omega) - \kappa(\omega)\}^2 \tag{2.148}$$

(2.145)式より、$k(\omega) - \kappa(\omega)$のオーダーを考えると、

$$k(\omega) - \kappa(\omega) = O(\Omega^2) \tag{2.148}$$

ここで、Oはランダウの記法である。(2.148)式右辺第二項のオーダーを考えると、

$$\{k(\omega) - \kappa(\omega)\}^2 = O(\Omega^4) \tag{2.149}$$

したがって、(2.148)式において右辺第二項の寄与は右辺第一項と比べて非常に小さく、$O(\Omega^4)$を無視することとする。これにより、(2.140)式にその近似が与えられ、

$$\frac{\partial \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi} = \frac{i}{2\kappa(\omega)}\Delta_\perp \hat{\mathcal{E}} + i\{k(\omega) - \kappa(\omega)\}\hat{\mathcal{E}} + \frac{i}{2\kappa(\omega)}\frac{\omega^2}{c^2}\frac{\hat{\mathcal{P}}_{NL}}{\epsilon_0} \tag{2.150}$$

この伝搬方程式を GFEA: Generalized Few-cycle Envelope Approximation と呼ぶ。また、(2.145)式より、さらに変形でき、

$$\frac{\partial \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi} = \frac{i}{2\kappa(\omega)}\Delta_\perp \hat{\mathcal{E}} + i\left\{\sum_{l=2}^{+\infty}\frac{k_0^{(l)}}{l!}\Omega^l\right\}\hat{\mathcal{E}} + \frac{i}{2\kappa(\omega)}\frac{\omega^2}{c^2}\frac{\hat{\mathcal{P}}_{NL}}{\epsilon_0} \tag{2.151}$$

GFEA において$O(\Omega^4)$を無視する近似を行ったため、この項においても$O(\Omega^4)$を無視してよい。

$$\sum_{l=2}^{+\infty}\frac{k_0^{(l)}}{l!}\Omega^l = \frac{k_0^{(2)}}{2}\Omega^2 + \frac{k_0^{(3)}}{6}\Omega^3 + O(\Omega^4) \tag{2.152}$$

$k_0^{(2)}$は群速度分散パラメータと呼び、実験的に求められている。これより、

$$\frac{\partial \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi} = \frac{i}{2\kappa(\omega)}\Delta_\perp \hat{\mathcal{E}} + i\frac{k_0^{(2)}}{2}\Omega^2\hat{\mathcal{E}} + i\frac{k_0^{(3)}}{6}\Omega^3\hat{\mathcal{E}} + \frac{i}{2\kappa(\omega)}\frac{\omega^2}{c^2}\frac{\hat{\mathcal{P}}_{NL}}{\epsilon_0} \tag{2.153}$$

が得られる。分散が小さい場合、$O(\Omega^3)$も無視することができ、

$$\frac{\partial \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi} = \frac{i}{2\kappa(\omega)}\Delta_\perp \hat{\mathcal{E}} + i\frac{k_0^{(2)}}{2}\Omega^2\hat{\mathcal{E}} + \frac{i}{2\kappa(\omega)}\frac{\omega^2}{c^2}\frac{\hat{\mathcal{P}}_{NL}}{\epsilon_0} \tag{2.154}$$

(2.65)式と同様に、電流項を考慮する場合には、電流の包絡線関数$\mathcal{J}$を用いて、

$$\frac{\partial \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi} = \frac{i}{2\kappa(\omega)}\Delta_\perp \hat{\mathcal{E}} + i\frac{k_0^{(2)}}{2}\Omega^2\hat{\mathcal{E}} + \frac{i}{2\kappa(\omega)}\frac{\omega^2}{c^2}\frac{\hat{\mathcal{P}}_{NL}}{\epsilon_0} - \frac{1}{2\kappa(\omega)}\frac{\omega}{c^2}\frac{\hat{\mathcal{J}}}{\epsilon_0} \tag{2.155}$$

最後に、周波数スペクトルが十分小さいと仮定した場合、回折と非線形分極項に含まれる項を近似すると、

$$\kappa(\omega) \approx k_0, \omega \approx \omega_0 \tag{2.156}$$

$$\frac{\partial\hat{\mathcal{E}}}{\partial\xi}=\frac{i}{2k_0}\Delta_\perp\hat{\mathcal{E}}+i\frac{k_0^{(2)}}{2}\Omega^2\hat{\mathcal{E}}+\frac{i}{2n_0}\frac{\omega_0}{c}\frac{\hat{\mathcal{P}}_{NL}}{\epsilon_0}-\frac{1}{2n_0}\frac{\hat{\mathcal{J}}}{\epsilon_0 c} \tag{2.157}$$

これを非線形シュレディンガー方程式（NLSE: Nonlinear Schrödinger Equation）と呼ぶ。周波数領域の記述から時間軸での記述に書き換えると、(2.132)式を用いて、

$$\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial\xi}=\frac{i}{2k_0}\Delta_\perp\mathcal{E}-i\frac{k_0^{(2)}}{2}\frac{\partial^2\mathcal{E}}{\partial\tau^2}+\frac{i}{2n_0}\frac{\omega_0}{c}\frac{\mathcal{P}_{NL}}{\epsilon_0}-\frac{1}{2n_0}\frac{\mathcal{J}}{\epsilon_0 c} \tag{2.158}$$

以上、時間軸での非線形シュレディンガー方程式の導出が説明された。NLSE は非線形伝搬計算において最も単純な方程式であり、これまでの説明で用いた様々な近似が適用されている。

2-6　大気の非線形光学現象を考慮した非線形シュレディンガー方程式

前節で導出した非線形シュレディンガー方程式において、大気の非線形光学現象を考慮した波動方程式を導出する。第 1 章で述べた通り、大気の非線形光学効果は大きくわけて光カー効果と電離の二種類である。これらの要素を非線形分極や電流項に取り入れることで、波動方程式を構築する。

I. 光カー効果：光カー効果は電場の三次の非線形分極が起源となる現象である。

$$P_{NL}(t)=\epsilon_0\chi^{(3)}E^3(t) \tag{2.159}$$

電場振動が包絡線を用いて次のように与えられる場合を考える。

$$E(z,t)=\frac{1}{2}\mathcal{E}\,exp\{i(k_0z-\omega_0t)\}+c.c. \tag{2.160}$$

電場の三乗を計算すると、

$$\begin{aligned}E^3(z,t)&=\frac{1}{8}\{\mathcal{E}\,exp(ik_0z-i\omega_0t)+\mathcal{E}_0^*\,exp(-ik_0z+i\omega_0t)\}^3\\&=\frac{1}{8}\{\mathcal{E}_0^3\,exp(3ik_0z-3i\omega_0t)+3|\mathcal{E}|^2\mathcal{E}_0^*\,exp(ik_0z-i\omega_0t)+c.c.\}\end{aligned} \tag{2.161}$$

このように、電場の三乗は周波数ωの分極と 3 倍周波数3ωの分極を生じる。周波数3ωの光を放射する現象は第三高調波発生と呼ばれ、基本波と三倍波がともに進んでいく二色フィラメンテーション現象はこれが理由である。三倍波の生成効率は一般的に 0.1%程度であるため、本研究ではレーザの集光特性には影響しないとして無視する[8,9]。したがって、非線形分極は基本波の搬送波$exp(ik_0z-i\omega_0t)$を用いて次のように表される。

$$P_{NL}(z,t)=\frac{1}{2}\mathcal{P}_{NL}\,exp\{i(k_0z-\omega_0t)\}+c.c. \tag{2.162}$$

これらの関係から、

$$\mathcal{P}_{NL}=\frac{3}{4}\epsilon_0\chi^{(3)}|\mathcal{E}|^2\mathcal{E} \tag{2.163}$$

電場振幅の絶対値の二乗はレーザ強度に比例するため、この非線形分極もレーザ強度に比例する。これを時間領域での非線形シュレディンガー方程式(2.158)式に代入すると、

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = \frac{i}{2k_0}\Delta_\perp \mathcal{E} - i\frac{k_0^{(2)}}{2}\frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial \tau^2} + \frac{i}{2n_0}\frac{\omega_0}{c}\frac{3}{4}\chi^{(3)}|\mathcal{E}|^2\mathcal{E} \tag{2.164}$$

三次の電気感受率$\chi^{(3)}(\omega)$が求まれば$\mathcal{E}$について解くことができる。一般的には、実験的に求められた実効的な屈折率を用いて、レーザ強度と電場振幅の関係が次のように表される。

$$I \equiv \frac{1}{2}\epsilon_0 c n_0 |\mathcal{E}|^2 \tag{2.165}$$

非線形分極を考慮した屈折率は、(2.62)式の波動方程式から、

$$n^2 = 1 + \chi^{(1)} + \chi^{(3)}\frac{3}{4}|\mathcal{E}|^2 = n_0^2 + \chi^{(3)}\frac{3}{4}|\mathcal{E}|^2 \tag{2.166}$$

屈折率がレーザ強度とカー指数n_2に応じて高まると定義すると、

$$n \equiv n_0 + n_2 I \tag{2.167}$$

非線形分極による屈折率の変化がn_0に比べて小さいため、

$$n^2 = n_0^2 + 2n_0 n_2 I + n_2^2 I^2 \approx n_0^2 + 2n_0 n_2 I \tag{2.168}$$

これらより、カー指数n_2と三次電気感受率$\chi^{(3)}$は次のような関係となる。

$$2n_0 n_2\left(\frac{1}{2}\epsilon_0 c n_0 |\mathcal{E}|^2\right) = \chi^{(3)}\frac{3}{4}|\mathcal{E}|^2 \tag{2.169}$$

$$n_2 = \frac{3}{4n_0^2\epsilon_0 c}\chi^{(3)} \tag{2.170}$$

カー指数を用いて非線形分極を表すと、

$$\frac{\mathcal{P}_{NL}}{\epsilon_0} = 2n_0 n_2 I\mathcal{E} \tag{2.171}$$

先ほどと同様に非線形シュレディンガー方程式に代入すると、次のように簡潔に表される。

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = \frac{i}{2k_0}\Delta_\perp \mathcal{E} - i\frac{k_0^{(2)}}{2}\frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial \tau^2} + i\frac{\omega_0}{c}n_2 I\mathcal{E} \tag{2.172}$$

数値計算においては規格化した包絡線$\mathcal{E}_\mathcal{N}$がよく用いられる。

$$E(z,t) = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{2}{\epsilon_0 c n_0}}\mathcal{E}_\mathcal{N}\, exp\{i(k_0 z - \omega_0 t)\} + c.c. \tag{2.173}$$

これにより、レーザ強度は規格化包絡線の二乗で表すことができ、定数はすべての項で除去されるため、(2.172)式はさらに簡潔になる。

$$\frac{\partial \mathcal{E}_\mathcal{N}}{\partial \xi} = \frac{i}{2k_0}\Delta_\perp \mathcal{E}_\mathcal{N} - i\frac{k_0^{(2)}}{2}\frac{\partial^2 \mathcal{E}_\mathcal{N}}{\partial \tau^2} + i\frac{\omega_0}{c}n_2|\mathcal{E}_\mathcal{N}|^2\mathcal{E}_\mathcal{N} \tag{2.174}$$

以上、光カー効果を考慮した非線形シュレディンガー方程式の導出が説明された。

II. 大気の電離による非線形吸収：自己集束や外部の集光レンズによってレーザ強度が高まると、電気的に中性な原子や分子を電離する。電離は安定状態にある電子を空間に放出することであり、その結果、電子に対してレーザのエネルギーが譲渡される。このプロセスを非線形吸収と呼ぶ。非線形吸吸収によって消費されるエネルギーは、

$$E_{loss,1} = \mathrm{W}(I)K\hbar\omega_0(\rho_{nt} - \rho) \tag{2.175}$$

$K\hbar\omega_0$は中性原子や分子を一つ電離するのに必要なエネルギー、Kが必要光子数、$\hbar\omega_0$が 1 光子エネルギーである。電離率$\mathrm{W}(I)$は、その場の中性粒子密度と積されることで単位時間あたりの単位体積あたりの電離電子数を表す。レーザ強度は時間平均で与えられるため、$E_{loss,1}$は電離によって消費する単位体積あたりのエネルギーの時間平均である。一方で、電圧と電流の積は損失エネルギーを表すことから、

$$E_{loss,2} = \frac{1}{T}\int_0^T J_{loss}(t)E(t)\,dt \tag{2.176}$$

電流密度と電場の積において、時間Tの平均を取ることで、$E_{loss,2}$は単位体積あたりの消費エネルギーのT時間平均を表す。時間Tを振動の一周期分に取ると、非線形吸収によって生じた電流J_{loss}を得ることができる。初期位相ϕを考慮した電場と電流を次のように表す。

$$E(t) = \frac{1}{2}\mathcal{E}\,exp(-i\omega t) + c.c. \tag{2.177}$$

$$J(t) = \frac{1}{2}\mathcal{J}\,exp(-i\omega t) + c.c. \tag{2.178}$$

$$\mathcal{E} = E_0\,exp(i\phi) \tag{2.179}$$

$$\mathcal{J} = J_0\,exp(i\phi) \tag{2.180}$$

E_0、J_0は最大振幅を表す実数である。平均する時間Tを一周期とし、

$$T = \frac{2\pi}{\omega} \tag{2.181}$$

$$E_{loss,2} = \frac{\omega}{2\pi}\int_0^{\frac{2\pi}{\omega}}\left\{\frac{1}{2}\mathcal{J}\,exp(-i\omega t) + c.c.\right\}\left\{\frac{1}{2}\mathcal{E}\,exp(-i\omega t) + c.c.\right\}dt \tag{2.182}$$

$$E_{loss,2} = \frac{\omega}{2\pi}\frac{1}{4}\int_0^{\frac{2\pi}{\omega}}\mathcal{J}\mathcal{E}\,exp(-2i\omega t) + J\mathcal{E}^* + J^*\mathcal{E} + J^*\mathcal{E}^*\,exp(-2i\omega t)\,dt \tag{2.183}$$

振動成分を持つ項は、時間平均を取るとゼロになるため、

$$E_{loss,2} = \frac{1}{4}(J\mathcal{E}^* + J^*\mathcal{E}) \tag{2.184}$$

(2.179)、(2.180)式より、$J\mathcal{E}^*$、$J^*\mathcal{E}$は初期位相成分が打ち消し合うため実数となり、これらは同一の値を持つため、

$$E_{loss,2} = \frac{1}{2}J\mathcal{E}^* \tag{2.185}$$

これらが一致するとき、包絡線で示された損失電流を求めることができるため、

$$\frac{1}{2}J\mathcal{E}^* = \mathrm{W}(I)K\hbar\omega_0(\rho_{nt} - \rho) \tag{2.186}$$

両辺に$\mathcal{E}$を積し、

$$\frac{1}{2}J\mathcal{E}\mathcal{E}^* = \mathrm{W}(I)K\hbar\omega_0(\rho_{nt} - \rho)\mathcal{E} \tag{2.187}$$

$\mathcal{E}\mathcal{E}^*$は$|\mathcal{E}|^2$であり、レーザ強度に変換できるため、

$$\frac{1}{2}J \cdot \frac{2}{\epsilon_0 c n_0} I = \mathrm{W}(I)K\hbar\omega_0(\rho_{nt} - \rho)\mathcal{E} \tag{2.188}$$

$$\frac{J}{\epsilon_0 c} = n_0 \frac{\mathrm{W}(I)K\hbar\omega_0(\rho_{nt} - \rho)}{I}\mathcal{E} \tag{2.189}$$

(2.158)式の電流項にこれを代入することにより、

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = \frac{i}{2k_0}\Delta_\perp \mathcal{E} - i\frac{k_0^{(2)}}{2}\frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial \tau^2} + \frac{i}{2n_0}\frac{\omega_0}{c}\frac{\mathcal{P}_{NL}}{\epsilon_0} - \frac{1}{2}\frac{\mathrm{W}(I)K\hbar\omega_0(\rho_{nt} - \rho)}{I}\mathcal{E} \tag{2.190}$$

規格化した包絡線電場を用いると次のようになる。

$$\frac{\partial \mathcal{E}_\mathcal{N}}{\partial \xi} = \frac{i}{2k_0}\Delta_\perp \mathcal{E}_\mathcal{N} - i\frac{k_0^{(2)}}{2}\frac{\partial^2 \mathcal{E}_\mathcal{N}}{\partial \tau^2} + \frac{i}{2n_0}\frac{\omega_0}{c}\frac{\mathcal{P}_{NL}}{\epsilon_0} - \frac{1}{2}\frac{\mathrm{W}(I)K\hbar\omega_0(\rho_{nt} - \rho)}{|\mathcal{E}_\mathcal{N}|^2}\mathcal{E}_\mathcal{N} \tag{2.191}$$

以上、非線形吸収過程を考慮した非線形シュレディンガー方程式の導出が説明された。

III. 大気のレーザ電離率計算：非線形吸収過程では、レーザ電離率$\mathrm{W}(I)$を求める必要がある。第 1 章で示したように、10^{15} W/cm^2 以下のレーザ強度範囲の電離メカニズムは多光子吸収とトンネル電離の二種類があり、Keldysh 理論や PPT モデルを用いてレーザ電離率を計算することができる。多光子吸収電離を仮定できる場合には、電離率は次のように近似できる。

$$\mathrm{W}(I) = \sigma_K I^K \tag{2.192}$$

σ_Kは光子数Kに応じた多光子吸収断面積であり、実験的に求められる。超短パルスレーザ加工では、一般的にトンネル電離も生じるレーザ強度に到達するため、この記述は適切ではない。1965 年に Keldysh は多光子吸収とトンネル電離を考慮した水素原子の電離率$W_{Keldysh}$を計算する式を導出し

た[11]。

$$W_{Keldysh} = 4\sqrt{2}\omega\left(\frac{U_i}{\hbar\omega}\right)^{\frac{3}{2}}\left(\frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}}\right)^{\frac{5}{2}} S\left(\gamma, \frac{U_i+U_p}{\hbar\omega}\right) exp\left\{-\frac{2(U_i+U_p)}{\hbar\omega}\left[sinh^{-1}\gamma - \gamma\frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{1+2\gamma^2}\right]\right\} \quad (2.192a)$$

$$S(\gamma, x) = \sum_{n=0}^{\infty} exp\{-\alpha(< x+1 > -x+n)\} \times \Phi\left\{\sqrt{\beta(< x+1 > -x+n)}\right\} \quad (2.192b)$$

$$\alpha = 2\left(sinh^{-1}\gamma - \frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}}\right) \quad (2.192c)$$

$$\beta = \frac{2\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}} \quad (2.192d)$$

$$\Phi(z) = \int_0^z exp(y^2 - z^2)\, dy \quad (2.192e)$$

ここで、$\hbar\omega$：レーザ波長に対応する光子エネルギー、U_i：第一イオン化エネルギー、U_p：ポンデロモーティブエネルギー、γ：Keldysh パラメータである。電離率$W_{Keldysh}$の単位はs^{-1}である。ある時間Δt経過後の空間の電離確率Rは以下のように表される。

$$R = 1 - exp(-W_{Keldysh}\Delta t) \quad (2.193)$$

上記の Keldysh 理論により、レーザ電場による単電子原子の電離率および電離量を求められる。

1966 年には Perelomov、Popov、Terent'ev らによって新たな電離モデル、PPT モデルが構築された[12-14]。PPT モデルでは取り去る電子の軌道を考慮することで多電子原子の電離率を計算することが可能とされている。原子単位系(a.u.)を使用し、$m_e = |q_e| = \hbar = a_B = 1$とすると、PPT モデルによる電離率は次のように計算される。

$$W_{PPT} = \frac{4\sqrt{2}}{\pi}|C_{n*,l*}|^2\left(\frac{2E_0}{E_p\sqrt{1+\gamma^2}}\right)^{2n^*-\frac{3}{2}-|m|}\frac{f(l,m)}{|m|!}exp\left\{-2\nu\left[sinh^{-1}\gamma - \gamma\frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{1+2\gamma^2}\right]\right\}$$
$$\times U_i\frac{\gamma}{1+\gamma^2}\sum_{\kappa=\nu_0}^{\infty} exp\{-\alpha[\kappa-\nu]\}\,\Phi_m\left(\sqrt{\beta(\kappa-\nu)}\right) \quad (2.194a)$$

$$E_0 = (2U_i)^{\frac{3}{2}} \quad (2.194b)$$

$$|C_{n*,l*}|^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^*\Gamma(n^*+l^*+1)\Gamma(n^*-l^*)} \quad (2.194c)$$

$$f(l,m) = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}|m|!\,(l-|m|)!} \quad (2.194d)$$

$$\nu = \frac{U_i+U_p}{[\hbar\omega]_{a.u.}} \quad (2.194e)$$

$$\nu_0 = <\nu + 1> \tag{2.194f}$$

$$\Phi_m(z) = \int_0^z (z^2 - y^2)^{|m|} exp(y^2 - z^2)\, dy \tag{2.194g}$$

ここで、$n^* = Z/\sqrt{2U_i}$：有効主量子数、$l^* = n^* - 1$：有効方位量子数、m：磁気量子数である。Fig. 1.8 に示したように、酸素分子や窒素分子に対する有効核電荷の設定により、実験結果をよく再現できることが報告されている[15]。この修正を加えたモデルを修正 PPT モデルと呼ぶ。酸素分子の有効核電荷は 0.53 eV、窒素分子の有効核電荷は 0.90 eV である。また、酸素分子と窒素分子では有効方位量子数、磁気量子数は 0 である。PPT モデルによって得られたレーザ強度に依存した電離率を Fig. 2.5 に示す。イオン化エネルギーの小さな酸素分子の方が低レーザ強度で電離することが確認できる。このように、レーザ強度に応じた電離率を求め、電離過程や非線形吸収過程を計算できる。PPT モデルの計算式は文献によって表記が異なる場合がある。酸素分子や窒素分子の電離率は実験的に求められているため、必ずしも電離率の算出モデルを使用する必要はなく、実験から得られる電離率を使用することもできる。

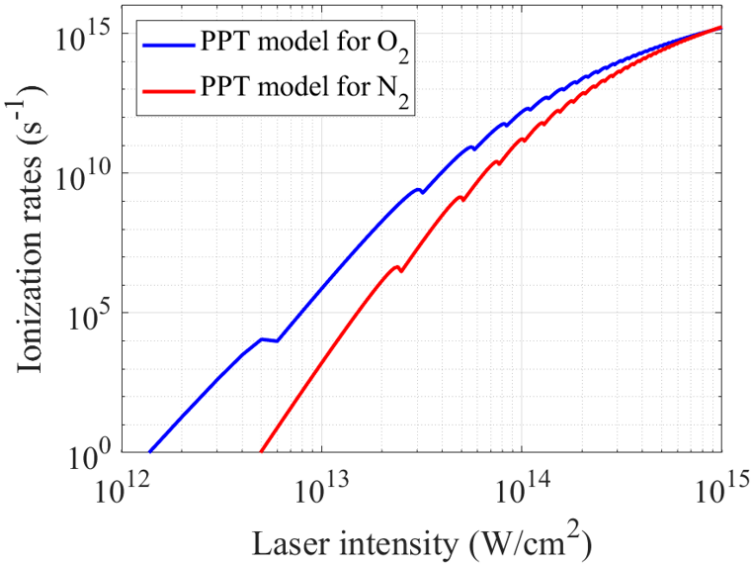


Fig. 2.5 Laser intensity dependent ionization rates of oxygen and nitrogen molecules calculated by the PPT model for a laser wavelength of 800 nm.

IV. プラズマ中のレーザ伝搬：光カー効果による非線形分極は束縛された電子に関するものである。電離によって生じたプラズマ（自由電子）もまた分極を引き起こす。この分極は電流密度としても解釈できる。プラズマの電流密度を考慮する場合、一般的に Drude モデルが使用される。Drude モデルは、電子が電場に対して線形に応答すると仮定し、電子の衝突を考慮したモデルである。電子が衝突すると、電場とは無関係にランダムな方向に運動が変化する。電子の電場による振動運動の最中に、一部の電子が衝突によってランダムな方向に運動するため、抵抗のように作用する。

電子の分極を求めるために、電子の運動量変化を記述する方程式を導出する。ある時刻$t + dt$における電子の運動量は、時刻tにおける電子の運動量に、外部の場と時間dtからなる力積を加えた

和で表される。ただし、電子が衝突する場合、衝突した電子の運動量はランダム方向に運動し、十分に多くの衝突があるために全体の運動としては失われたとみなされる。電子の衝突までの時間、平均自由時間をτ_cとすると、ある時間dtの間に電子が衝突する確率はdt/τ_cで表すことができる。したがって、運動量変化の方程式は次のようになる。

$$p(t+\Delta t) = \left(1-\frac{\Delta t}{\tau_c}\right)p(t) + F\Delta t \tag{2.195}$$

微分形式で表示できるように、右辺第一項を左辺に移項すると、

$$\rho(t+\Delta t) - p(t) = -\frac{\Delta t}{\tau_c}p(t) + F\Delta t \tag{2.196}$$

$$\frac{\rho(t+\Delta t) - p(t)}{\Delta t} = -\frac{1}{\tau_c}p(t) + F \tag{2.197}$$

時間幅をゼロに近づけると左辺は微分で表すことができるため、

$$\frac{dp(t)}{dt} = -\frac{1}{\tau_c}p(t) + F \tag{2.198}$$

$p(t)$は電子の運動量であるから、変位で表すと

$$p = mv = m\frac{dx}{dt} \tag{2.199}$$

力Fは電場と電子の電荷の積で表されるので、これらを微分方程式に代入すると、

$$m\frac{d^2x}{dt^2} + m\frac{1}{\tau_c}\frac{dx}{dt} = -eE(t) \tag{2.200}$$

これは抵抗のある物体の単振動の運動方程式に等しい。

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \frac{1}{\tau_c}\frac{dx}{dt} = -\frac{eE(t)}{m} \tag{2.201}$$

電子の変位は分極を表すことになるから、プラズマの自由電子密度を$\rho(t)$とすると、

$$P(t) = -e\rho(t)x(t) \tag{2.202}$$

$$x(t) = -\frac{P(t)}{e\rho(t)} \tag{2.203}$$

これを(2.201)式に代入すると、分極の微分方程式を表すことができる。

$$\left(\frac{d^2}{dt^2} + \frac{1}{\tau_c}\frac{d}{dt}\right)P(t) = \frac{e^2}{m}\rho(t)E(t) \tag{2.204}$$

(2.4)式より、分極の微分は電流とみなしてよいから、

$$\left(\frac{d}{dt} + \frac{1}{\tau_c}\right)J(t) = \frac{e^2}{m}\rho(t)E(t) \tag{2.205}$$

周波数領域で考えると、

$$\left\{(-i\omega)+\frac{1}{\tau_c}\right\}\hat{J}(\omega)=\frac{e^2}{m}\widehat{\rho E}(\omega) \tag{2.206}$$

これを解き、

$$\hat{J}(\omega)=\left(\frac{\tau_c}{-i\omega\tau_c+1}\right)\frac{e^2}{m}\widehat{\rho E}(\omega)=\frac{e^2}{m}\left\{\frac{\tau_c(1+i\omega\tau_c)}{1+\omega^2\tau_c^2}\right\}\widehat{\rho E}(\omega) \tag{2.207}$$

中心周波数ω_0に対する臨界プラズマ密度ρ_cを用いると、

$$\rho_c=\frac{m\epsilon_0\omega_0^2}{e^2} \tag{2.208}$$

$$\frac{1}{n(\omega)}\frac{\hat{J}}{\epsilon_0 c}=\frac{\omega_0^2\tau_c}{n(\omega)c\rho_c}\left(\frac{1+i\omega\tau_c}{1+\omega^2\tau_c^2}\right)\widehat{\rho E}(\omega)=\sigma_{IB}(\omega)(1+i\omega\tau_c)\widehat{\rho E}(\omega) \tag{2.209}$$

非線形シュレディンガー方程式に基づいて左辺を変形した。ここで、$\sigma_{IB}(\omega)$は逆制動放射断面積であり、次のように定義される[10]。

$$\sigma_{IB}(\omega)=\frac{\omega_0^2\tau_c}{n(\omega)c\rho_c}\frac{1}{1+\omega^2\tau_c^2} \tag{2.210}$$

電流と電場を包絡線に置き換えた場合でも、周波数依存性を無視した非線形シュレディンガー方程式である(2.157)式の電流項にこれを代入することができ、

$$\frac{\partial\hat{\mathcal{E}}}{\partial\xi}=\frac{i}{2k_0}\Delta_\perp\hat{\mathcal{E}}+i\frac{k_0^{(2)}}{2}\Omega^2\hat{\mathcal{E}}+\frac{i}{2n_0}\frac{\omega_0}{c}\frac{\hat{\mathcal{P}}_{NL}}{\epsilon_0}-\frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{2}(1+i\omega_0\tau_c)\widehat{\rho\mathcal{E}}(\omega_0) \tag{2.211}$$

時間軸についても同様に、逆制動放射の効果を取り入れることができ、

$$\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial\xi}=\frac{i}{2k_0}\Delta_\perp\mathcal{E}-i\frac{k_0^{(2)}}{2}\frac{\partial^2\mathcal{E}}{\partial\tau^2}+\frac{i}{2n_0}\frac{\omega_0}{c}\frac{\mathcal{P}_{NL}}{\epsilon_0}-\frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{2}(1+i\omega_0\tau_c)\rho\mathcal{E} \tag{2.212}$$

以上、プラズマ密度$\rho(t)$を考慮した非線形シュレディンガー方程式の導出が説明された。

I-III の効果をすべて取り込んだ非線形シュレディンガー方程式は次のようになり、大気中の光の非線形伝搬を記述できる。

$$\begin{aligned}\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial\xi}&=\frac{i}{2k_0}\Delta_\perp\mathcal{E}-i\frac{k_0^{(2)}}{2}\frac{\partial^2\mathcal{E}}{\partial\tau^2}+i\frac{\omega_0}{c}n_2|\mathcal{E}_\mathcal{N}|^2\mathcal{E}_\mathcal{N}\\&-\frac{1}{2}\frac{\mathrm{W}(I)K\hbar\omega_0(\rho_{nt}-\rho)}{|\mathcal{E}_\mathcal{N}|^2}\mathcal{E}_\mathcal{N}-\frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{2}(1+i\omega_0\tau_c)\rho\mathcal{E}_\mathcal{N}\end{aligned} \tag{2.213}$$

V. 電子密度のレート方程式：プラズマ中のレーザ伝搬を計算する際には、時間変化する電子密度の考慮が不可欠である。電子密度は初期条件でゼロとし、外部電場によって引き起こされる電離によって増加する。非線形吸収で用いた電離率を用いて、多光子吸収電離とトンネル電離を考慮し、プラズマへの吸収で考慮した逆制動放射断面積を考慮して、衝突電離をモデル化する。レーザフィラメンテーション分野では、一般的に以下に示す電子のレート方程式が使用される。

$$\frac{d\rho}{dt} = W(I)(\rho_{nt} - \rho) + \frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{U_p}\rho I - f(\rho) \tag{2.214}$$

右辺第一項はレーザ電離、第二項は衝突電離、第三項は再結合を表す。超短パルスレーザではパルス幅が十分に短いため、電子の再結合は一般的に考慮されない。ただし、衝突電離項は、電子密度が中性粒子密度よりも十分に小さい場合（$\rho \ll \rho_{nt}$）にのみ成り立つ。レーザフィラメンテーション分野では、到達するレーザ強度が低く電子密度も大きくならないため、この近似を満たす。しかし、超短パルスレーザ加工分野では、到達レーザ強度が高く電子密度も高くなるため、この近似は成り立たない。

Schmitt-Sody らは、ピコ秒パルスに対する衝突電離計算方法として、電子温度とそれに依存する断面積を用いた[16]。このモデルでは、電子温度を考慮することにより、自由電子密度が高い条件でも瞬時に衝突電離量が増加せず、衝突電離の時間的な遅れを表現することができる。

$$\frac{d\rho_{O_2^+}}{dt} = W_{O_2}^{PPT}(I)(\rho_{O_2}^{(0)} - \rho_{O_2^+}) + \frac{\sigma_{O_2}}{E_{O_2}}\rho_e I \tag{2.215}$$

$$\frac{d\rho_{N_2^+}}{dt} = \frac{\sigma_{N_2}}{E_{N_2}}\rho_e I \tag{2.216}$$

ここで、粒子ごとの衝突電離断面積は次のように定義される。

$$\sigma_X = \frac{e^2 \nu_X(T_e)}{m_e \epsilon_0 n_0 c \omega_0^2} \tag{2.217}$$

$\nu_X(T_e)$は電子温度T_eに依存した衝突頻度である。分子種、イオン種に応じた衝突頻度は次のように与えられている。

$$\nu_{O_2^+}(T_e) = 7 \times 10^{-6} \rho_{O_2^+}[cm^{-3}](T_e[eV])^{-3/2}\ [s^{-1}] \tag{2.217}$$

$$\nu_{O_2}(T_e) = 2 \times 10^{-7} \left(\rho_{O_2}^{(0)}[cm^{-3}] - \rho_{O_2^+}[cm^{-3}]\right)(T_e[eV])^{1/2}\ [s^{-1}] \tag{2.218}$$

$$\nu_{N_2^+}(T_e) = 7 \times 10^{-6} \rho_{N_2^+}[cm^{-3}](T_e[eV])^{-3/2}\ [s^{-1}] \tag{2.219}$$

$$\nu_{N_2}(T_e) = 2 \times 10^{-7} \left(\rho_{N_2}^{(0)}[cm^{-3}] - \rho_{N_2^+}[cm^{-3}]\right)(T_e[eV])^{1/2}\ [s^{-1}] \tag{2.220}$$

電子温度が低い場合、電子とイオンの衝突頻度が高まるが、電子温度が上昇すると電子と中性粒子の衝突が支配的になる。レーザ伝搬に伴い、衝突によって電子温度が上昇することを以下の式で計算している。

$$\frac{d}{dt}T_e = \frac{2}{3k_B}\sigma_e I - \left(\frac{T_e}{E_{O_2}} + \frac{2}{3k_B}\right)\sigma_{O_2} I - \left(\frac{T_e}{E_{N_2}} + \frac{2}{3k_B}\right)\sigma_{N_2} I \tag{2.221}$$

$$\sigma_e = \sigma_{O_2^+} + \sigma_{N_2^+} + \sigma_{O_2} + \sigma_{N_2} \tag{2.222}$$

電子温度はボルツマン分布に従うと仮定し、ボルツマン定数を介した電子の平均運動エネルギーで定義される。衝突電離によって生じる新たな電子はエネルギーを持たないため、電子温度を下げるように作用する。ただし、(2.221)式では中性粒子との衝突を考慮していないため、電子温度計算は不確かである。

Koga らのモデルは、フェムト秒からナノ秒パルスレーザの伝搬に対して、電子温度分布を考慮した衝突電離を計算する方法である[17]。このモデルでは、衝突時に保有する電子の運動エネルギーに応じて衝突電離量を計算し、第一イオン化エネルギー未満の運動エネルギーを持つ電子が衝突電離を起こすことがないように制約を加えている。電子のレート方程式は次のように与えられる。

$$\frac{dP_{m^+}}{dt} = \Gamma_m P_m + W(I)P_m \tag{2.223}$$

$$\Gamma_m = \int_0^\infty \rho(\epsilon)\,\sigma_m(\epsilon)v(\epsilon)d\epsilon \tag{2.224}$$

P_mとP_{m^+}は中性粒子密度とイオン密度を表す。また、$\Gamma_m P_m$は衝突電離の総量を表し、$\rho(\epsilon)$は電子エネルギーϵを持つ電子密度、$\sigma_m(\epsilon)$は電子エネルギーに依存する衝突電離断面積、$v(\epsilon)$は電子の速度を表す。衝突電離断面積は、実験的に求められた値を引用している[18]。この断面積は Fig. 2.6 に示すような電子エネルギー依存性を持つ。また、電子温度分布を次のように計算される。

$$\frac{d\rho(\epsilon)}{dt} = \sum_m [-\nu_m(\epsilon)\rho(\epsilon) + \nu_m(\epsilon + U_m)\rho(\epsilon + U_m)] + \delta(\epsilon - \epsilon_1)\int_0^\infty \nu_m(\epsilon')\rho(\epsilon')d\epsilon' + \delta(\epsilon)W(I)P_m \tag{2.225}$$

$$\nu_m(\epsilon) = P_m\sigma_m(\epsilon)v(\epsilon) \tag{2.226}$$

$\delta(\epsilon)$はデルタ関数を表す。$\nu_m(\epsilon)$は電子エネルギーに依存する衝突電離率を示す。(2.225)式の右辺第一項はエネルギーϵを持つ自由電子の衝突電離による減少、第二項はエネルギー$\epsilon + U_m$を持つ自由電子の衝突電離によるエネルギーϵを持つ自由電子の増加を表す。第三項は、衝突電離によって生じる新たな電子のエネルギーはϵ_1とし、第四項はレーザ電離によって生じる電子のエネルギーはゼロとすることを表す。これらの電子は逆制動放射によってレーザエネルギーを吸収するため、Drude モデルから以下の式で計算される。

$$\frac{d\epsilon}{dt} = \frac{1}{2}\frac{e^2E^2}{m_e}\sum_m\left(\frac{\nu_{cm}(\epsilon)}{\nu_{cm}^2(\epsilon) + \omega_0^2}\right) \tag{2.227}$$

$$\nu_{cm}(\epsilon) = P_m\sigma_{cm}(\epsilon)v(\epsilon) \tag{2.228}$$

ボルツマン分布などの電子温度分布を仮定せずに計算を行うため、より現実的な衝突電離計算が可能となると考えられる。ただし、電子の速度は保有エネルギーから求めているが、実際には電場による電子の振動運動の速度も存在する。また、強い電場下での衝突電離率は光ドレスト状態の考慮も必要である。したがって、これらの計算もまた近似的な衝突電離計算であることに留意する必要がある。本研究では、$\sigma_{cm}(\epsilon)$の値を一定と仮定し、衝突電離の数値計算を行った。

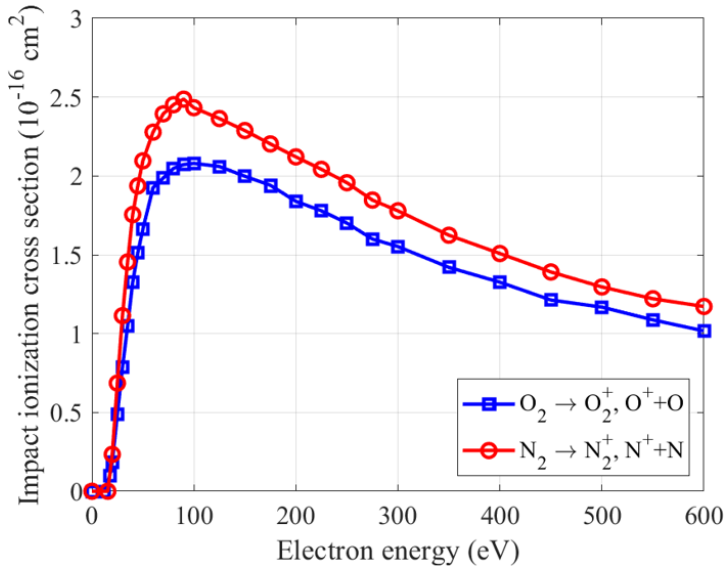


Fig. 2.6 The experimental total impact ionization cross sections for $O_2 \rightarrow O_2^+, O^+ + O$ and $N_2 \rightarrow N_2^+, N^+ + N$ [18].

2-7　理想的なガウシアンレーザ集光特性

一般的なガウシアン分布のレーザについて、理想的な集光特性を示す。ガウシアンレーザの集光特性はレーザ加工の基礎であり、導出の理解は重要である。空間方向の変化を考慮するにあたって、分散や非線形分極を無視できるため、(2.25)式の線形分極を考慮した波動方程式を用いる。ここで、(x, y, z)空間を伝搬する電磁波のうち、主にz方向に伝搬する電磁波を考える。z方向に伝搬する単一の周波数ω_0の電磁波の伝搬解は次のように表される。

$$E(x, y, z, t) = \frac{1}{2} E_0(x, y, z)\, exp\{i(k_0 z - \omega_0 t)\}\, exp\{i\phi_0(x, y, z)\} + c.c. \tag{2.229}$$

電場振幅の初期条件$E_0(x, y, z)$と初期位相$\phi_0(x, y, z)$をまとめて、複素電場振幅の初期条件$A(x, y, z)$とすると、

$$A(x, y, z) = E_0(x, y, z)\, exp\{i\phi_0(x, y, z)\} \tag{2.230}$$

$$E(x, y, z, t) = \frac{1}{2} A(x, y, z)\, exp\{i(k_0 z - \omega_0 t)\} + c.c. \tag{2.231}$$

電場振幅の初期条件にガウシアン分布を入力し、初期位相分布にレンズなどの集光条件を入力することでガウシアンレーザの伝搬を記述できる。(2.25)式にこれらを代入するために、微分項を事前に計算する。

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{1}{2} exp\{i(k_0 z - \omega_0 t)\} \frac{\partial}{\partial z} A(x, y, z) + \frac{ik_0}{2} A(x, y, z)\, exp\{i(k_0 z - \omega_0 t)\} + c.c. \tag{2.232}$$

二階の微分項も同様に、

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} = \frac{1}{2} exp\{i(k_0 z - \omega_0 t)\} \frac{\partial^2}{\partial z^2} A(x,y,z) + ik_0\, exp\{i(k_0 z - \omega_0 t)\} \frac{\partial}{\partial z} A(x,y,z)$$
$$- \frac{k_0^2}{2} A(x,y,z)\, exp\{i(k_0 z - \omega_0 t)\} + c.c. \tag{2.233}$$

また、時間の二階微分項も計算でき、

$$\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = -\frac{{\omega_0}^2}{2} A(x,y,z)\, exp\{i(k_0 z - \omega_0 t)\} + c.c. \tag{2.234}$$

これらを(2.25)式の波動方程式に代入し、すべての項が持つ 1/2 や$exp\{i(kz - \omega t)\}$を除すると、

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right) A + \frac{\partial^2}{\partial z^2} A + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial z} A - k_0^2 A(x,y,z,t) + \frac{\left(1 + \chi^{(1)}\right)}{c^2} \omega_0^2 A(x,y,z) = 0 \tag{2.235}$$

ここで、複素共役は無視した。振動成分が除されたため、これらは包絡線についての方程式となる。単色光において左辺第四項、左辺第五項は打ち消し合うため、

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right) A + \frac{\partial^2}{\partial z^2} A + 2ik_0 \frac{\partial A}{\partial z} = 0 \tag{2.236}$$

2-5-4 で示した緩包絡線近似の適用により、

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right) A + 2ik_0 \frac{\partial A}{\partial z} = 0 \tag{2.237}$$

この方程式は近軸 Helmholtz 方程式とも呼ばれる。レーザはビーム中心に対して軸対称であるから、角度に依存しない円筒座標系での記述が使用される。

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\right) A + 2ik_0 \frac{\partial A}{\partial z} = 0 \tag{2.238}$$

入力するレーザ初期条件はガウシアンビームであるから、定数A_0を用いて、次のようにガウシアン形の解を仮定する。

$$A(r,z) = A_0\, exp\{S(z)r^2 + T(z)\} \tag{2.239}$$

これを(2.238)に代入するために微分演算子を計算し、

$$\frac{\partial A}{\partial r} = 2S(z) r A_0\, exp\{S(z)r^2 + T(z)\} = 2S(z) r A \tag{2.240}$$

$$\frac{\partial^2}{\partial r^2} = \frac{\partial}{\partial r}\{2rS(z)A\} = \{2S(z) + 4S^2(z)r^2\}A \tag{2.241}$$

$$\frac{\partial A}{\partial z} = \left(r^2 \frac{\partial S}{\partial z} + \frac{\partial T}{\partial z}\right) A_0\, exp\{S(z)r^2 + T(z)\} = \left(r^2 \frac{\partial S}{\partial z} + \frac{\partial T}{\partial z}\right) A \tag{2.242}$$

以上より、(2.238)式は次のように変形される。

$$[\{2S(z) + 4S^2(z)r^2\}A + 2S(z)A] + 2ik_0 \left(r^2 \frac{\partial S}{\partial z} + \frac{\partial T}{\partial z}\right) A = 0 \tag{2.243}$$

r^2の項、r^0の項がそれぞれ 0 となる必要があるため、

$$4S^2(z) + 2ik_0\frac{\partial S}{\partial z} = 0 \tag{2.244}$$

$$4S(z) + 2ik_0\frac{\partial T}{\partial z} = 0 \tag{2.245}$$

(2.244)式を整理することにより、

$$\frac{S'(z)}{S^2(z)} = \frac{2i}{k_0} \tag{2.246}$$

両辺を積分することにより、

$$-\frac{1}{S(z)} = \frac{2i}{k_0}z + C_1 \tag{2.247}$$

$$S(z) = \frac{ik_0}{2(z + C_2)} \tag{2.248}$$

(2.245)式を整理することにより、

$$\frac{\partial T}{\partial z} = \frac{2i}{k_0}S(z) = -\frac{1}{z + C_2} \tag{2.249}$$

両辺を積分することにより、

$$T(z) = -ln(z + C_2) + C_3 \tag{2.250}$$

C_1、C_2、C_3は積分定数である。(2.210)式にこれらを代入し、

$$A(r,z) = A_0\, exp\left\{\frac{ik_0}{2(z + C_2)}r^2 - ln(z + C_2) + C_3\right\} \tag{2.251}$$

$$A(r,z) = A_0\frac{1}{z + C_2}exp\left\{\frac{ik_0}{2(z + C_2)}r^2\right\}exp(C_3) \tag{2.252}$$

$exp(C_3)$は定数であるから、A_0に吸収させる。C_2は任意の複素数であるが、実部はz方向の平行移動を表すのみであるから、純虚数に取ることができる。新たに、$C_2 = i\beta$と置くことにより、

$$A(r,z) = A_0\frac{1}{z + i\beta}exp\left\{\frac{ik_0}{2(z + i\beta)}r^2\right\} \tag{2.253}$$

$$A(r,z) = A_0\frac{z - i\beta}{z^2 + \beta^2}exp\left\{\frac{\beta k_0}{2(z^2 + \beta^2)}r^2\right\}exp\left\{\frac{ik_0 z}{2(z^2 + \beta^2)}r^2\right\} \tag{2.254}$$

ここで、$z = 0$において、ガウシアン分布の 1/e 半径を$\omega_{r,0}$と定義すると、

$$A(r,z) \propto exp\left(-\frac{r^2}{\omega_{r,0}^2}\right) \tag{2.255}$$

したがって、

$$\beta = -\frac{k_0\omega_{r,0}^2}{2} = -\frac{\pi\omega_{r,0}^2}{\lambda} = -z_0 \tag{2.256}$$

z_0はレイリー長と呼ばれ、ビーム拡がりを表す指標である。以上より、ガウシアンレーザの伝搬解は次のようになる。

$$A(r,z) = A_0\frac{z+iz_0}{z^2+z_0^2}exp\left\{-\frac{k_0z_0}{2(z^2+z_0^2)}r^2\right\}exp\left\{\frac{ik_0z}{2(z^2+z_0^2)}r^2\right\} \tag{2.257}$$

伝搬時のビーム径を$\omega_r(z)$とすると、

$$\omega_r(z) = \sqrt{\frac{2(z^2+z_0^2)}{k_0z_0}} = \sqrt{\frac{2z_0}{k}\left(1+\frac{z^2}{{z_0}^2}\right)} = \omega_{r,0}\sqrt{1+\left(\frac{\lambda z}{\pi\omega_{r,0}^2}\right)^2} \tag{2.258}$$

$z = z_0$のとき、ビーム径は$\sqrt{2}$倍になる。球面波の伝搬解と形式的に一致するように、伝搬時の曲率半径を$R(z)$とすると、

$$R(z) = \frac{z^2+z_0^2}{z} = z\left\{1+\left(\frac{\pi\omega_{r,0}^2}{\lambda z}\right)^2\right\} \tag{2.259}$$

これらを用いて、(2.257)式を書き直すことができ、

$$A(r,z) = A_0\frac{z+iz_0}{z^2+z_0^2}exp\left\{-\frac{r^2}{\omega_r^2(z)}\right\}exp\left\{\frac{ik_0}{2R(z)}r^2\right\} \tag{2.260}$$

また、係数部分を書き換えることにより、以下の表記も可能である。

$$A(r,z) = B_0\frac{\omega_{r,0}}{\omega_r(z)}exp\left\{-\frac{r^2}{\omega_r^2(z)}\right\}exp\left\{\frac{ik_0}{2R(z)}r^2\right\}exp\{i\eta(z)\} \tag{2.261}$$

$$\eta(z) = arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) \tag{2.262}$$

$\eta(z)$をグイ位相シフト（Guoy phase shift）と呼ぶ。この伝搬解は、十分に遠方で一定のビーム広がり角度を持つとみなせる。これはビーム径に対するzの極限を取ることで求められ、

$$tan\theta = \lim_{z\to\infty}\frac{\omega_r(z)}{z} = \frac{\lambda}{\pi\omega_{r,0}} \tag{2.263}$$

以上のように求められたガウシアンビームの自由伝搬時の模式図を Fig. 2.7 に示す。

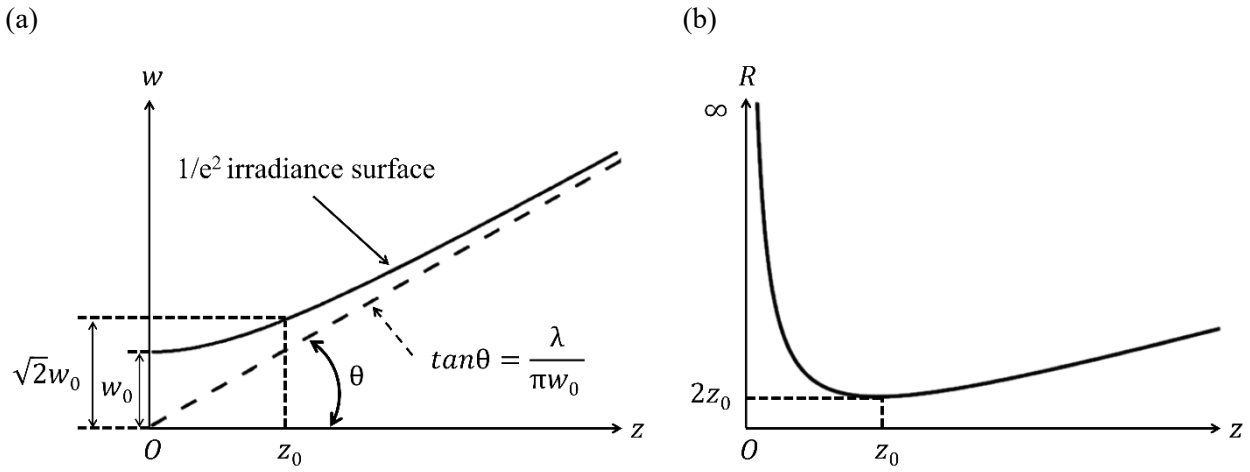


Fig. 2.7 Characteristic changes during Gaussian laser propagation. (a) beam radius, (b) curvature radius.

次に、レーザ伝搬経路にレンズを置いて集光する場合について説明する。球面平凸レンズの模式図を Fig. 2.8 に示す。レンズ中心部からの光とレンズ端部からの光は、ガラス内で通過する距離が異なるため、光路差が生じる。光軸（z軸）中心（レンズ中心）からの距離をρとすると、

$$\rho = \sqrt{x^2 + y^2} \tag{2.264}$$

球面レンズの曲率半径をR_lとすると、光軸上と距離ρの位置のガラスの厚みの差$d(\rho)$は、

$$d(\rho) = R_l - \sqrt{R_l^2 - \rho^2} \tag{2.265}$$

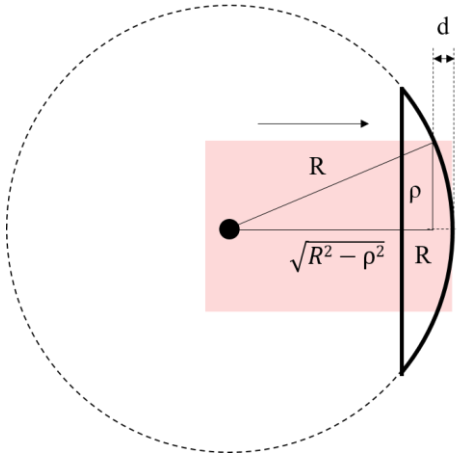


Fig. 2.8 Schematic diagram of spherical plano-convex lens.

光路長は屈折率と距離の積で表される。ガラスの屈折率をn_gとし、真空中を通過する場合、光軸中心を基準にした光路差$\Delta d_l(\rho)$は、次のように表される。

$$\Delta d_l(\rho) = (n_0 - n_g)d(\rho) = (1 - n_g)\left(R_l - \sqrt{R_l^2 - \rho^2}\right) \tag{2.266}$$

$R_l \gg \rho$が成り立つとき、近軸近似を用いて、

$$d(\rho) \approx R_l - R_l\left\{1 - \frac{1}{2}\left(\frac{\rho}{R_l}\right)^2\right\} = \frac{\rho^2}{2R_l} \tag{2.267}$$

$$\Delta d_l(\rho) \approx \left(1 - n_g\right)\frac{\rho^2}{2R_l} \tag{2.268}$$

ガラスの屈折率は 1.5 程度であるため、外周部の光ほど光路長が相対的に小さくなる。このような場合、ガラスを通ることで生じる位相差は、次の通りである。

$$\begin{aligned} &exp\{ik_0\Delta d_l(\rho)\} \\ &= exp\left\{-ik_0\frac{\left(n_g - 1\right)}{2R_l}(x^2 + y^2)\right\} \end{aligned} \tag{2.269}$$

ガウシアンレーザ伝搬途中の$z = z_l$にレンズを置くとき、(2.261)式において波面の曲率を表す項は、

$$\begin{aligned} &exp\left\{\frac{ik_0}{2R(z_l)}r^2\right\} \\ &= exp\left\{\frac{ik_0 z_l}{2(z_l^2 + z_0^2)}(x^2 + y^2)\right\} \end{aligned} \tag{2.270}$$

レンズの光路差による位相項をかけあわせ、

$$exp\left[\frac{ik_0 z_l}{2}\left\{\frac{z_l}{z_l^2 + z_0^2} - \frac{\left(n_g - 1\right)}{R_l}\right\}(x^2 + y^2)\right] \tag{2.271}$$

このように、位相項の初期条件はレンズによって変化する。(2.230)式より初期位相は任意であるため、レンズ位相項を加えた後もガウシアンの伝搬解は成立するため、(2.257)式の解を持つ。また、(2.252)式からわかるように、z軸方向への平行移動は任意である。したがって、レンズ位置z_lよりも後方の位置z_fで最小ビーム径ω_fを持つと仮定してよい。さらに、(2.256)式のレイリー長の定義から、最小ビーム径ω_fに対応するレイリー長ξ_0を定義すると、

$$\xi_0 = \frac{\pi\omega_f^2}{\lambda} \tag{2.272}$$

$$A(r,z) = A_0\frac{\left(z - z_f\right) + i\xi_0}{\left(z - z_f\right)^2 + \xi_0^2}exp\left[-\frac{k_0\xi_0}{2\left\{\left(z - z_f\right)^2 + \xi_0^2\right\}}r^2\right]exp\left[\frac{ik_0 z}{2\left\{\left(z - z_f\right)^2 + \xi_0^2\right\}}r^2\right] \tag{2.273}$$

ただし、$z \geq z_l$である。レンズ通過前の伝搬解である(2.257)式と、レンズ通過後の伝搬解である(2.273)式は、$z = z_l$においてレンズの位相項を介して一致しなければならない。そのため、ビーム径の項を比較し、

$$\frac{z_l^2 + z_0^2}{z_0} = \frac{\left(z_l - z_f\right)^2 + \xi_0^2}{\xi_0} \tag{2.274}$$

また、位相項を比較し、

$$\frac{z_l}{z_l^2 + z_0^2} - \frac{\left(n_g - 1\right)}{R_l} = \frac{z_l}{\left(z_l - z_f\right)^2 + \xi_0^2} \tag{2.275}$$

これら 2 式において、未知数はz_fとξ_0であるため、それぞれ求めることができる。

$$\xi_0 = \frac{f^2 z_0}{(z_l - f)^2 + z_0^2} \tag{2.276}$$

$$z_f = z_l + f\frac{z_0^2 + z_l(z_l - f)}{(z_l - f)^2 + z_0^2} \tag{2.277}$$

(2.272)式より、最小ビーム径ω_fを求めることができ、

$$\omega_f = \sqrt{\frac{\lambda\xi_0}{\pi}} \tag{2.278}$$

以上より、レンズ通過後の集光時のビーム径および波面の曲率半径は次のようになる。

$$\omega_{rf}(z) = \omega_f\sqrt{1 + \left\{\frac{\lambda(z - z_f)}{\pi\omega_f^2}\right\}^2} \tag{2.279}$$

$$R_f(z) = (z - z_f)\left[1 + \left\{\frac{\pi\omega_f^2}{\lambda(z - z_f)}\right\}^2\right] \tag{2.280}$$

(2.261)式と同様に、書き換えることができる。

$$A(r,z) = B_0\frac{\omega_f}{\omega_{rf}(z)}exp\left\{-\frac{r^2}{\omega_{rf}^2(z)}\right\}exp\left\{\frac{ik_0}{2R_f(z)}r^2\right\}exp\{i\eta_f(z)\} \tag{2.281}$$

$$\eta_f(z) = arctan\left(\frac{z - z_f}{\xi_0}\right) \tag{2.282}$$

最も集光した位置から十分に遠方にかけては、一定のビーム広がり角度を持つとみなせる。これはビーム径に対するzの極限を取ることで求められ、

$$tan\theta = \lim_{z\to\infty}\frac{\omega_{rf}(z)}{z} = \frac{\lambda}{\pi\omega_f} \tag{2.283}$$

以上のように求められたガウシアンビームの集光時の模式図を Fig. 2.9 に示す。

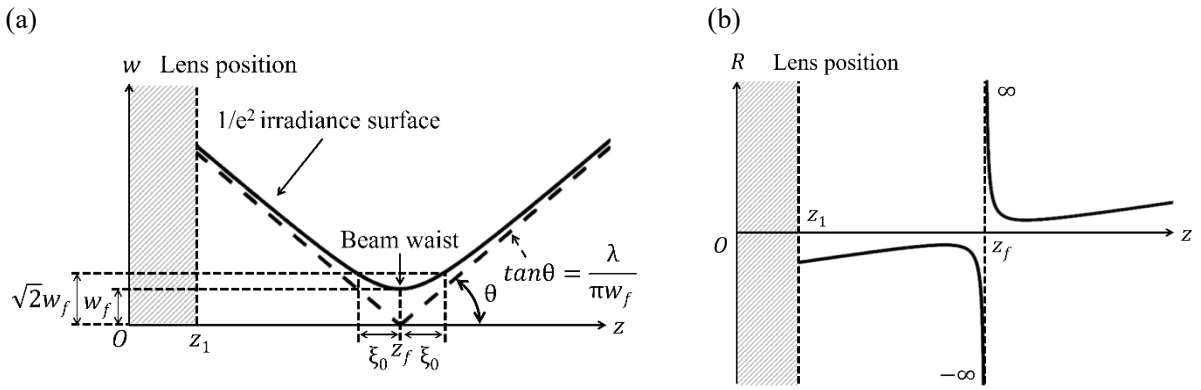


Fig. 2.9 Characteristic changes during Gaussian laser focusing. (a) beam radius, (b) curvature radius.

続いて、ガウシアンレーザ集光時のフルエンス分布を示す。フルエンスはパルスレーザ通過による単位面積当たりのエネルギー量を指し、理想的な集光分布においてはパルス幅や時間方向の関数に依存しない。したがって、集光時の電場は半径方向と伝搬方向のみに依存すると考えてよい。振動成分は無視し、包絡線を用いて考える。

$$\mathcal{E}(r,z) = \mathcal{E}_0 \frac{\omega_f}{\omega_{rf}(z)} exp\left\{-\frac{r^2}{\omega_{rf}^2(z)}\right\} \tag{2.284}$$

レーザ強度は次に示すように電場振幅の 2 乗に比例するため、最集光時のピーク強度をI_0とすると、

$$I(r,z) = \frac{1}{2}\epsilon_0 cn|\mathcal{E}(r,z)|^2 \tag{2.285}$$

$$I_0 = \frac{1}{2}\epsilon_0 cn\mathcal{E}_0^2 \tag{2.286}$$

$$I(r,z) = \left\{\frac{\omega_f}{\omega_{rf}(z)}\right\}^2 exp\left\{-\frac{2r^2}{\omega_{rf}^2(z)}\right\} \tag{2.287}$$

ある位置(r,z)にパルス時間波形$f_p(t)$に応じたレーザ強度が通過する場合、その位置のフルエンス$F(r,z)$は、レーザ強度とパルス時間波形を時間方向に積分したものとの積である。

$$F(r,z) = I(r,z)\int_{-\infty}^{\infty} f_p(t)dt \tag{2.288}$$

フルエンスをレーザ通過面積Sで積分した値はレーザパルスエネルギーJ_{all}に一致するため、

$$J_{all} = \int_S F(r,z)\,dS = \iint F(r,z)\,rdrd\theta = \iint\left\{I_0\left\{\frac{\omega_f}{\omega_{rf}(z)}\right\}^2 exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_{rf}^2(z)}\right)\int_{-\infty}^{\infty} f_p(t)dt\right\}rdrd\theta \tag{2.289}$$

(2.288)式において、$r: 0 \to \infty$、$\theta: 0 \to 2\pi$で積分することにより、ピーク強度I_0は次のように求まる。

$$\int_0^{\infty} rexp\left(-\frac{2r^2}{\omega_r^2(z)}\right)dr = \left[-\frac{\omega_r^2(z)}{4}exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_r^2(z)}\right)\right]_0^{\infty} = \frac{\omega_r^2(z)}{4} \tag{2.290}$$

$$I_0 = \frac{2J_{all}}{\pi\omega_f^2\int_{-\infty}^{\infty} f_p(t)dt} \tag{2.291}$$

したがって、最集光時のピーク強度は、パルスエネルギーJ_{all}と最集光時のビーム径ω_f、およびパルス時間波形$f_p(t)$によって決定される。(2.287)、(2.288)式より、

$$F(r,z) = I_0\left\{\frac{\omega_f}{\omega_{rf}(z)}\right\}^2 exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_{rf}^2(z)}\right)\int f_p(t)\,dt = \frac{2J_{all}}{\pi\omega_{rf}^2(z)}exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_{rf}^2(z)}\right) \tag{2.292}$$

ピークフルエンスは次のように定義できる。

$$F_0 = \frac{2J_{all}}{\pi\omega_{rf}^2(z)} \tag{2.293}$$

以上より、ガウシアンレーザ集光時のフルエンス分布は時間波形に依存せず、パルスエネルギーJ_{all}と各位置のビーム径$\omega_r(z)$によって決定される。集光時のフルエンス分布の例を Fig. 2.10 に示す。

使用した条件は波長800 nm、初期ビーム半径5 mm、レンズ設置位置0.1 mm、レンズ焦点距離70 mm、パルスエネルギー1.0 mJ である。最も集光する位置z_fをz軸の原点としている。

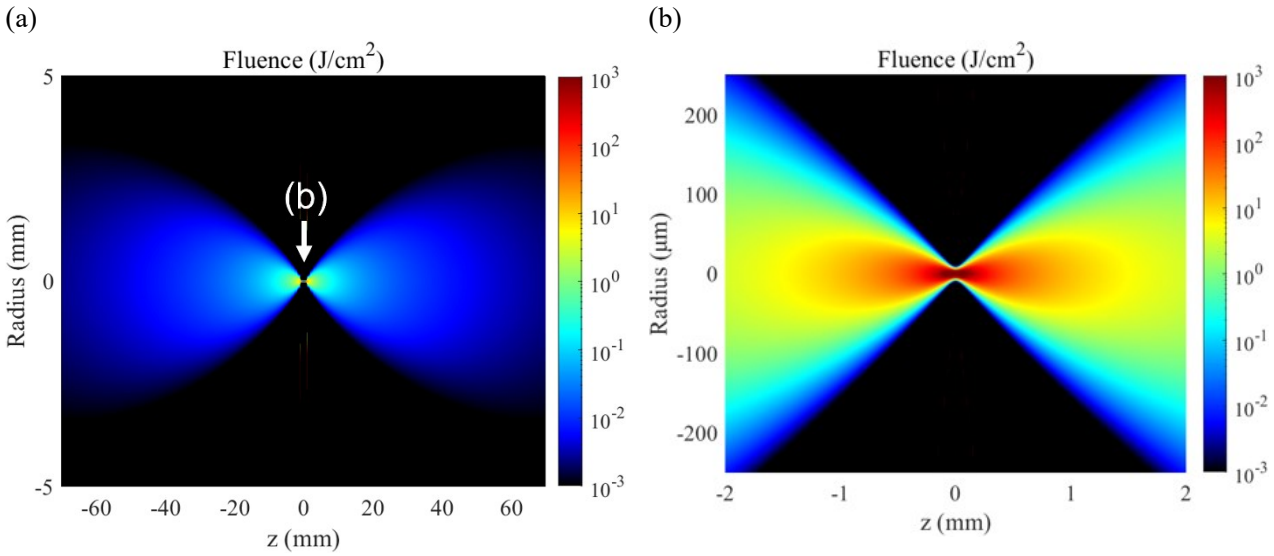


Fig. 2.10 (a) Fluence distribution during Gaussian laser focusing, (b) magnified view.

最後に、ガウシアンレーザ集光時のレーザ強度の時空間分布を示す。レーザ強度分布におけるパルス時間波形として、(2.83)式のようにガウシアン分布を仮定する。パルス内時間軸をτとし、

$$f_p(\tau) = exp\left(-\frac{2\tau^2}{\tau_p^2}\right) \tag{2.294}$$

ここで、τ_pはレーザ強度波形における$1/e^2$幅である。レーザ強度波形における半値全幅$\Delta\tau$は、

$$\Delta\tau = \tau_p\sqrt{2ln2} \tag{2.295}$$

パルス幅の定義としては半値全幅が用いられることが多い。本論文では両者とも記載する。(2.294)式の両辺を積分すると、ガウス積分により、

$$\int_{-\infty}^{\infty} f_p(t)dt = \tau_p\sqrt{\frac{\pi}{2}} \tag{2.296}$$

レーザ強度分布におけるパルス時間波形がガウシアン分布である場合、最集光時のピーク強度は、

$$I_0 = \frac{2J_{all}}{\pi\omega_f^2\tau_p}\sqrt{\frac{2}{\pi}} = \frac{F_0}{\tau_p}\sqrt{\frac{2}{\pi}} \tag{2.297}$$

レーザ強度と電場の関係(2.285)式から、ピーク電場振幅$\mathcal{E}_0$を求めることができ、

$$\mathcal{E}_0 = \sqrt{\frac{2I_0}{\epsilon_0 cn}} \tag{2.298}$$

パルス中心における包絡線の集光時の解は(2.281)式で与えられるが、パルス内時間に応じて光はz方向に平行移動する。負のパルス内時間はz方向に群速度v_gで伝搬しているため、$z = z(\tau)$とし、

$$z(\tau) = z - v_g t \tag{2.299}$$

$$\mathcal{E}(r,z,\tau) = \mathcal{E}_0 \frac{\omega_f}{\omega_{rf} z(\tau)} exp\left\{-\frac{r^2}{\omega_{rf}^2 z(\tau)}\right\} exp\left\{\frac{ik_0}{2R_f z(\tau)} r^2\right\} exp\{i\eta_f z(\tau)\} exp\left(-\frac{\tau^2}{\tau_p^2}\right) \tag{2.300}$$

これにより、任意の位置、時間の電場振幅を得ることができる。ただし、ここでは簡単のためチャープパルスを考慮していない。チャープパルスを考慮する場合、時間波形は伝搬距離に応じて変化し、次のように記述される。

$$f_p(\tau) = \sqrt{\frac{T_0}{T_1(z)}} exp\left\{-(1 + iC(z)) \frac{T^2}{T_1(z)^2}\right\} exp\big(i\theta_t(z)\big) \tag{2.301}$$

$$T_1(z) = T_0 \sqrt{\left(1 + \frac{Cz}{L_D}\right)^2 + \left(\frac{z}{L_D}\right)^2} \tag{2.302}$$

$$C(z) = C + (1 + C^2) \frac{z}{L_D} \tag{2.303}$$

$$\theta_t(z) = \frac{1}{2} arctan\left(\frac{\frac{z}{L_D}}{1 + \frac{Cz}{L_D}}\right) \tag{2.304}$$

$$L_D = \frac{T_0^2}{2\left|k_0^{(2)}\right|} \tag{2.305}$$

T_0：電場振幅が 1/e（レーザ強度が 1/e²）となる時間、$k_0^{(2)}$：群速度分散パラメータ、C：チャープパラメータ、L_D：分散長である。チャープパルスは本研究において重要ではないため、その詳細な導出は省略する。なお、一次元方向の光伝搬を仮定できない強い開口数（NA > 0.1）においては、これらの解から誤差を生じることに留意する必要がある。また、ガウシアンレーザの伝搬解は高次のモードも存在し、エルミートガウシアンモードやラゲールガウシアンモードなどがある。これらはレーザ加工や通信の分野で活用される例がある。ただし、電場は方位角方向θの依存性を持つため、数値シミュレーションの計算コストは膨大である。本研究では最も低次のガウシアンレーザを扱う。

2-8　結言

本章では、レーザ伝搬現象の基本である線形伝搬方程式について説明した後、非線形伝搬における方程式の導出について説明した。特に、非線形伝搬計算において用いられる非線形シュレディンガー方程式は、さまざまな近似手法によって成立しており、これが超短パルスレーザ加工分野のレーザ伝搬計算にも適用可能であることを示した。また、大気の非線形光学現象の考慮方法や数値計算方法についても説明した。最後に、レーザ加工において重要なガウシアンレーザの自由伝搬やレンズによる集光特性について、具体的に詳述した。

参考文献

[1] A. Couairon, and A. Mysyrowicz, “Femtosecond filamentation in transparent media”, Phys. Rep., Vol. 441, pp. 47-189 (2007).

[2] J. C. Maxwell, “A dynamical theory of the electromagnetic field”, Phil. Trans. R. Soc. Lond., Vol. 155, pp. 459-512 (1865).

[3] R. P. Feynman, R. B. Leighton, and M. L. Sands, “The Feynman Lectures on Physics Volume II”, the California Institute of Technology, Chapter 18 (1964).

[4] M. Born and E. Wolf, “Principles of Optics Seventh edition”, Cambridge, UK: Cambridge University Press, Chapter 1, (1999).

[5] P. Kinsler, “Optical pulse propagation with minimal approximations”, Phys. Rev. A, Vol. 81, No. 013819 (2010)

[6] L. Bergé, S. Skupin, R. Nuter, J. Kasparin, and J. -P. Wolf. “Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media”, Rep. Prog. Phys., Vol. 70, pp. 1633-1713 (2007).

[7] Carsten Brée, “Nonlinear Optics in the Filamentation Regime”, Springer Theses, Chapter 2, (2012).

[8] N. Aközbek, A. Iwasaki, A. Becker, M. Scalora, S. L. Chin, and C. M. Bowden, “Third-Harmonic Generation and Self-Channeling in Air Using High-Power Femtosecond Laser Pulses”, Phys. Rev. Lett., Vol. 89, No. 14 (2002).

[9] H. Yang, J. Zhang, J. Zhang, L. Z. Zhao, Y. J. Li, H. Teng, Y. T. Li, Z. H. Wang, Z. L. Chen, Z. Y. Wei, J. X. Ma, W. Yu, and Z. M. Sheng, “Third-order harmonic generation by self-guided femtosecond pulses in air”, Phys. Rev. E, Vol. 67, No. 015401 (2003).

[10] E. Yablonovitch and N. Bloembergen, “Avalanche Ionization and the Limiting Diameter of Filaments Induced by Light Pulses in Transparent Media”, Phys. Rev. Lett., Vol. 29, No. 14, pp. 907-910 (1972).

[11] L. V. Keldysh, “Ionization in the field of a strong electromagnetic wave”, Sov. Phys. JETP, Vol. 20, No. 5, pp. 1307-1314 (1965).

[12] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent’ev, “Ionization of atoms in an alternating electric field”, Sov. Phys. JETP, Vol. 23, No. 5, pp. 924-934 (1966).

[13] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent’ev, “Ionization of atoms in an alternating electric field: II”, Sov. Phys. JETP, Vol. 24, No. 1, pp. 207-216 (1967).

[14] A. M. Perelomov and V. S. Popov, “Ionization of atoms in an alternating electric field: III”, Sov. Phys. JETP, Vol. 25, No. 2, pp. 336-343 (1967).

[15] A. Talebpour, J. Yang, S. L. Chin, “Semi-empirical model for the rate of tunnel ionization of N_2 and O_2 molecule in an intense Ti:sapphire laser pulse”, Opt. Commun., Vol. 163, pp. 29-32 (1999).

[16] A. Schmitt-Sody, H. G. Kurz, L. Bergé, S. Skupin, and P. Polynkin, “Picosecond laser filamentation in air,” New J. Phys. Vol. 18, No. 093005 (2016).

[17] J. K. Koga, K. Moribayashi, Y. Fukuda, S. V. Bulanov, A. Sagisaka, K. Ogura, H. Daido, M. Yamagiwa, T. Kimura, T. Fujikawa, M. Ebina, and K. Akihama, “Simulation and experiments of the laser induced breakdown of air for femtosecond to nanosecond order pulses”, J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 43, No. 025204 (2010).

[18] C. Tian and C. R. Vidal, “Electron impact ionization of N_2 and O_2: contributions from different dissociation channels of multiply ionized molecules,” J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., Vol. 31, pp. 5369-5381 (1998).

第 3 章　大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ加工における フェムト秒-ピコ秒領域パルス幅依存性

3-1　緒言

超短パルスレーザ加工は、フェムト秒からピコ秒のパルスレーザを用いた加工技術であり、金属やガラスなどの材料の精密加工に幅広く応用されている[1-3]。商業化された安定した高出力レーザシステムの発展により、高繰り返し周波数と高パルスエネルギーのレーザ加工が可能となっている。特に、ミリジュール級のパルスエネルギーの利用は、高効率なアブレーション加工だけでなく、大気中でも十分な衝撃力を得られるため、レーザ衝撃加工技術への応用が期待されている[4]。アブレーションの機構は、第 1 章で示したように、レーザ強度、レーザフルエンス、パルス幅に依存している。したがって、これらのパラメータ依存性を解明することは、加工特性を制御する上で重要である[5-14]。

レーザ衝撃加工の一種であるドライレーザピーニングでは、数十 μJ よりも数百 μJ のパルスエネルギーが有効な結果をもたらす傾向にある[4]。ミリジュール級のパルスエネルギーを使用して高フルエンス領域の加工を行うことで、ピーニング効果のさらなる向上が期待される。しかし、超短パルスレーザ加工は通常数十 μJ 程度の低フルエンス領域で行われることが一般的であり、高フルエンス領域での超短パルスレーザ加工に関する知見は限られている[15,16]。また、数十 mJ を用いた超短パルスレーザピーニングの研究報告もあるが、表層の圧縮残留応力は得られず、高フルエンス領域での超短パルスレーザ加工においてパラメータ設定が重要であることが示唆されている[17]。特に、材料への圧縮残留応力付与に着目するピーニングにおいては、熱影響を抑制する必要がある。

超短パルスレーザ加工において、パルス幅はパルスエネルギーと同様に重要なパラメータである。レーザ照射後、数ピコ秒程度の時間経過で電子温度と格子温度は熱平衡状態に達し、熱拡散が開始され、熱影響が生じる[18]。このため、アブレーション閾値はパルス幅に依存し、特に数ピコ秒のパルス幅ではアブレーション効率が低下することが知られている[8,12]。さらに、パルス幅はレーザ強度にも直接関連しており、レーザ吸収過程などの現象にも影響を及ぼす。そのため、フェムト秒からピコ秒のパルス幅領域における超短パルスレーザ加工の調査は意義深いものである。特に、高フルエンス領域での超短パルスレーザ加工やドライレーザピーニングにおいて、パルス幅が加工特性に及ぼす影響は未解明である。

本章では、mJ 級のパルスエネルギーおよび高フルエンス領域における超短パルスレーザ加工のパルス幅依存性を解明することを目的とする。具体的には、パルスエネルギーを 1 mJ に統一し、パルス幅を 180 fs から 8 ps まで変化させ、超短パルスレーザアブレーションおよびドライレーザピーニングを実施する。アブレーション深さや代表的なピーニング効果である圧縮残留応力分布を計測し、適切なレーザパラメータと照射条件に関する洞察を得る。また、高フルエンス領域で生じる加工の物理現象を詳細に調査し、高フルエンス領域超短パルスレーザ加工の性能向上のための指針を提示することを目指す。

3-2　実験方法

3-2-1　供試材料

本研究では、高張力鋼 HT780 を試験片として用いた。用いた HT780 の化学組成を Table 3.1 に、機械的性質を Table 3.2 に示す。HT780 試験片は 1 辺 10 mm の立方体である。レーザ照射の前処理として、耐水研磨紙#800、#1200、#2000 による研磨後、粒径 1 μm のダイヤモンド粒子を用いたバフ研磨（鏡面研磨）を行った。

Table 3.1 Chemical compositions of HT780.

C	Si	Mn	P	S	Cr	Mo	V	Nb	Fe
0.14	0.35	1.17	0.006	0.001	0.08	0.12	0.08	0.02	Bal.

Table 3.2 Mechanical properties of HT780.

Yield stress (MPa)	Tensile strength (MPa)	Elongation (%)
820	854	29

3-2-2　レーザ照射条件、レーザ加工条件

本研究で使用した超短パルスレーザ装置は、Light conversion, Inc 製の PHAROS である。この装置の中心波長は 1028 nm、ビーム径（レーザ強度が$1/e^2$となる半径）は 1.75 mm、最大パルスエネルギーは 1 mJ、最大繰り返し周波数は 1 kHz である。レーザ強度が$1/e^2$となるパルス幅は最短パルス幅 180 fs から最長パルス幅 20 ps まで可変である。レーザ強度の半値全幅で定義されるパルス幅に換算すると、最短パルス幅は 211 fs となる。本章でのパルス幅の定義は、レーザ強度が$1/e^2$となるパルス幅とする。レーザ強度分布はガウシアン分布である。また、レーザ照射条件は、パルスエネルギーを 0.95 mJ に統一し、パルス幅を 180 fs から 8 ps まで変化させ、パルス幅依存性に着目する。レーザ集光には、焦点距離 70 mm の球面平凸レンズを用いた。焦点距離は設計波長 546.1 nm に対して定義されており、波長 1028 nm に対する焦点距離は 71.54 mm である。Fig. 3.1(a)に示すように、収差が小さくなるようにレーザを平凸レンズの凸面に入射させ、X-Y 自動ステージ上に設置した試験片に大気中でレーザを集光照射した。

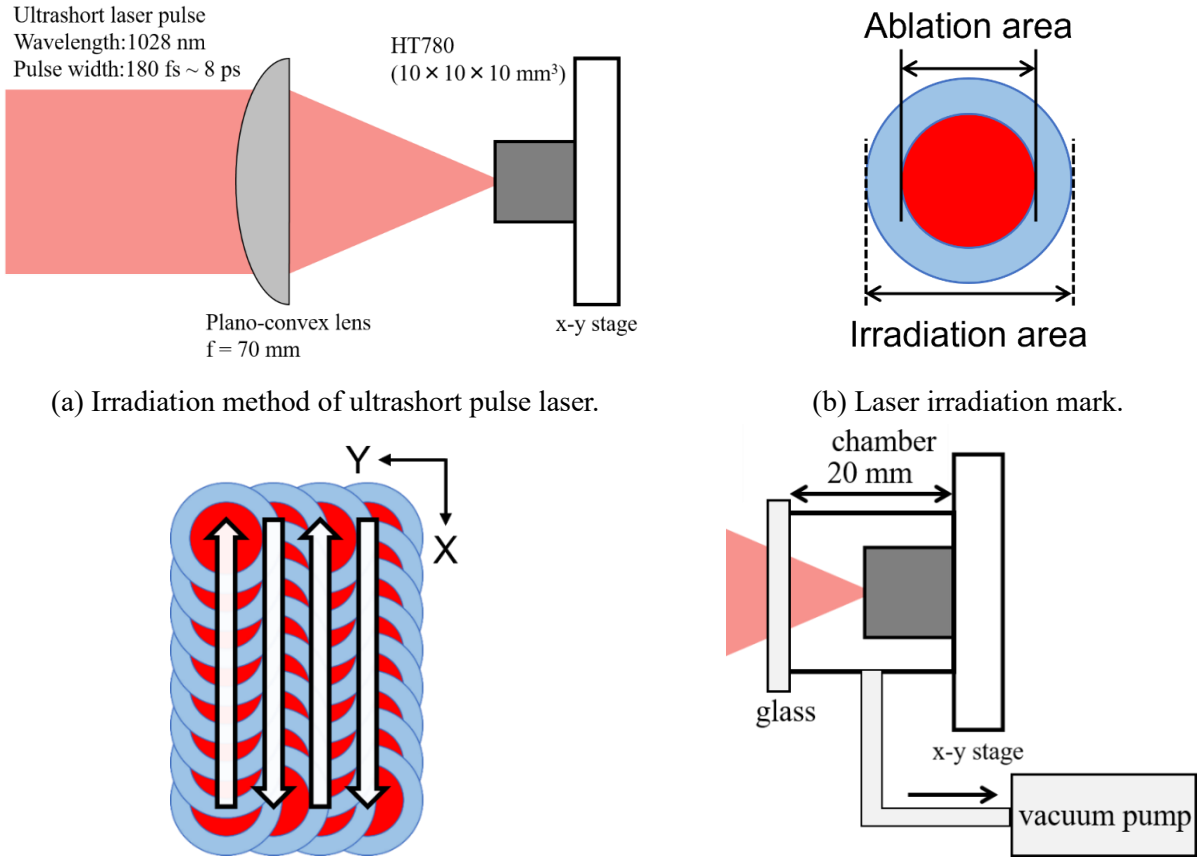
超短パルスレーザアブレーションによる照射痕は、Fig. 3.1(b)に示すようにアブレーション径と照射径から構成される。ピーニングは Fig. 3.1(c)に示すように、最適なレーザ照射位置で試験片表面全体に超短パルスレーザを重畳照射するプロセスである。最適なレーザ照射位置を特定するために、焦点位置近傍で光軸方向にステージを移動させ、連続的にアブレーション加工を行った。最適なレーザ照射位置は照射径が小さく、アブレーション径が最大となる位置とした。これは、最も集光した高いフルエンス条件が望ましいと考えられているためである。アブレーション面積に対するパルス間のステップ距離を定めることにより、単位面積あたりの照射回数を表すカバレージを定義する。

$$Coverage(\%) = \pi D^2/4d^2 \times 100 \tag{3.1}$$

ここで、Dはシングルショットにおけるアブレーション径(μm)、dはパルス間のステップ距離(μm)である。アブレーション径は光学顕微鏡観察により決定する。本実験では、カバレージを 4000%に統一し、(3.1)式から各条件におけるパルス間のステップ距離dを決定した。実験後、レーザ顕微鏡を

用いて厳密なアブレーション径を計測した結果、カバレージは 2000%から 4400%までのばらつきを生じた。ピーニング施工は繰り返し周波数を 500 Hz として行った。

また、低真空中でのレーザ照射実験を行った。Fig. 3.1(d)に示すように、X-Y 自動ステージにチャンバーを取り付け、その中に試験片を設置した。このチャンバーは深さ 20 mm であり、厚み約 1 mm のガラスで密閉され、油回転真空ポンプを使用して真空引きを行った。到達真空度は 10 Pa 以下の低真空である。



(a) Irradiation method of ultrashort pulse laser.

(b) Laser irradiation mark.

(c) Scan irradiation method of the ultrashort pulse lasers.

(d) Experimental setup in vacuum.

Fig. 3.1 Schematic illustrations of the experimental setup of dry laser peening.

3-2-3　光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡による照射痕観察

ピーニング施工における最適なレーザ照射位置を決定するために、各位置でレーザを 8 回照射し、光学顕微鏡（HiROX 製、KH-7700）を用いて焦点位置近傍での照射領域推移を観察した。さらに、照射領域推移とアブレーション領域推移を詳細に観察するために、走査型電子顕微鏡（SEM: Scanning Electron Microscope、JEOL 社製、JSM-IT500）を用いて観察を行った。

3-2-4　レーザ顕微鏡によるアブレーション観察

パルス幅に依存したアブレーション分布を調査するために、パルス幅 180 fs、1 ps、4 ps の条件において、アブレーション深さの測定を行った。この測定にはレーザ顕微鏡（キーエンス製、VK-9700）を使用した。測定時の倍率は 50 倍で、平面方向の分解能は 0.2913 μm、深さ方向のピッチは 0.02 μm

とした。1 回の照射ではアブレーション深さが小さく、計測誤差が大きいため、8 回照射時の観察を行った。得られたデータは、試験片の傾きを補正して、焦点位置より上流 3.0 mm から下流 1.0 mm まで、0.25 mm ごとに観察し、集光に伴うアブレーション領域推移を取得した。真空条件では、アブレーション深さが大きいため、照射回数は 4 回とした。

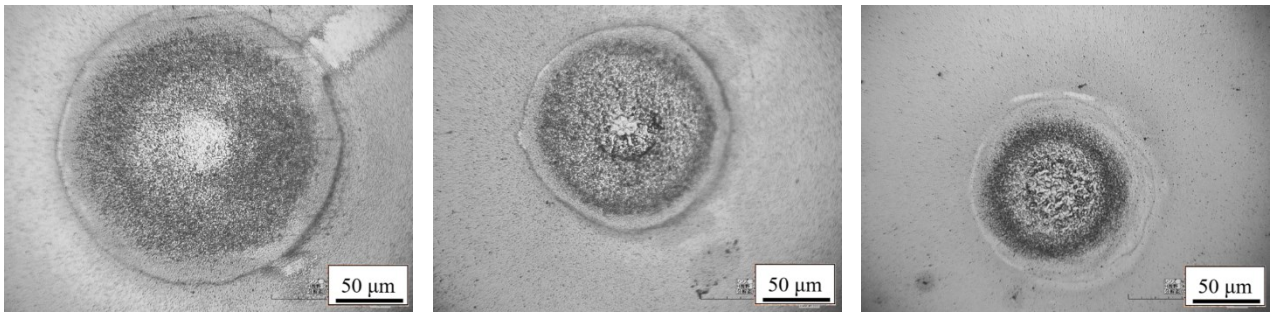
3-2-5　cosα 法による深さ方向の残留応力分布計測

パルス幅とレーザ強度が試験片の表層および内部の応力状態に及ぼす影響を評価するため、ドライレーザピーニング後の試験片に対して cosα 法による残留応力測定を行った。X 線残留応力測定は $\sin^2\Psi$ 法が一般的であるが、空間的な制約や膨大な測定時間が必要となる。一方で、cosα 法は短時間での測定が可能である[19]。残留応力測定には X 線残留応力測定装置（パルステック製、μ-X360s）を用いて、波長 2.2897 Å である Cr 管球の Kα 線を試料表面に対して 35 degree で入射させた。解析に使用する回折面は(211)面とした。試料のヤング率は 224 GPa、ポアソン比は 0.28 とした。ドライレーザピーニングを施した試料に対して、電解研磨と X 線残留応力測定を交互に繰り返し、深さ方向の残留応力分布を破壊的に求めた。電解研磨には 5%過塩素酸酢酸を用いた。

3-3　実験結果

3-3-1　光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡による照射痕観察結果

初めに、パルス幅 180 fs、500 fs、1 ps の条件における焦点位置での照射痕の観察結果を Fig. 3.2(a)-(c)に示す。焦点位置は後述するように、真空中での実験から求めたものである。それぞれの照射痕半径の値を Table 3.3 に示す。照射痕の光学顕微鏡による判定は、母材と比較して円形に着色する領域とした。照射痕半径の詳細な定義は SEM 観察にて行う。パルス幅が短い条件ほど、焦点位置での照射痕径が大きく、アブレーション領域が小さいことが分かる。ドライレーザピーニングにおいて、高エネルギーほどピーニング効果が向上する傾向があるため、単位面積あたりのエネルギー、フルエンスは大きくすべきであると考えられる。したがって、焦点位置に限定せず、近傍で照射痕の大きさが最小となる位置を探索した。



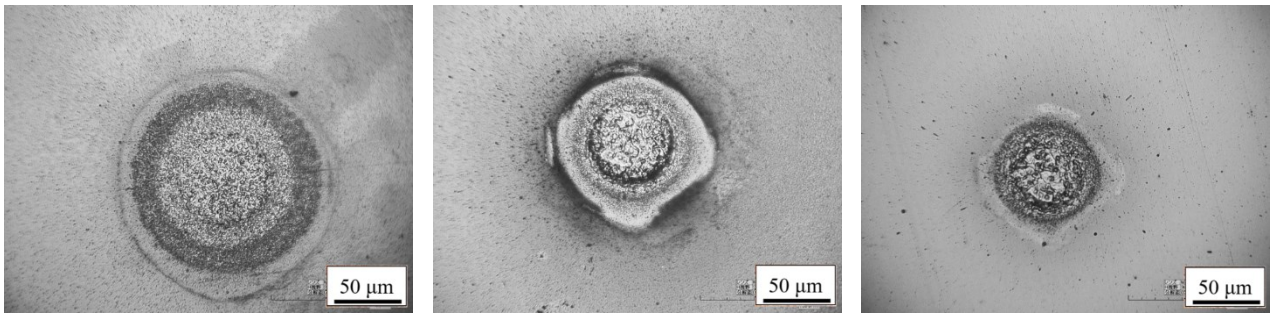
(a) 180 fs.　　(b) 500 fs.　　(c) 1 ps.

Fig. 3.2 Optical microscope images of irradiation marks at the focal position for each pulse width.

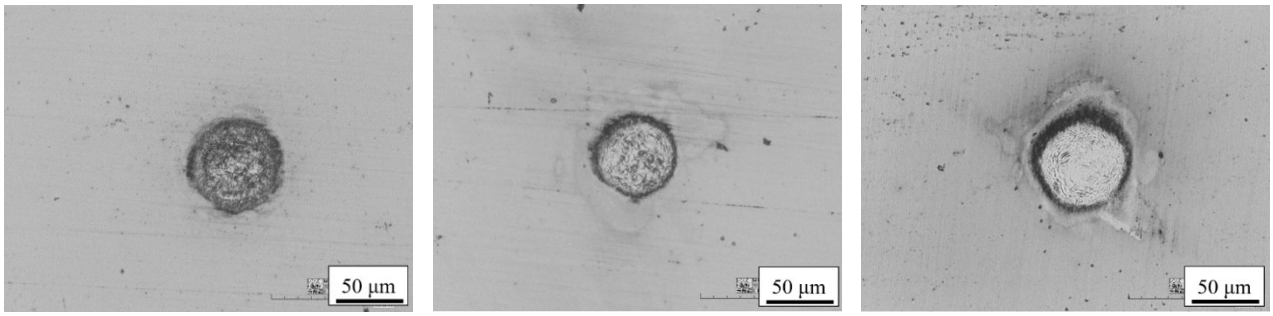
Table 3.3 Measurement of irradiation area radius at the focal position.

Pulse width	Radius of irradiation marks (μm)
180 fs	107
500 fs	78
1 ps	67

次に、パルス幅 180 fs、500 fs、1 ps、2 ps、4 ps、8 ps の各条件で最小となる照射痕の光学顕微鏡観察結果を Fig. 3.3 に示す。また、最小照射領域半径を Table 3.4 に示す。パルス幅 180 fs、500 fs、1 ps の条件では、焦点位置よりも上流側で最小の照射痕を得られることが分かった。最小照射痕半径はパルス幅 1 ps 以上の条件で 40 μm 程度と一定であるのに対して、パルス幅 1 ps 未満の条件では照射痕が拡大してしまうことが明らかである。



(a) 180 fs. (b) 500 fs. (c) 1 ps.



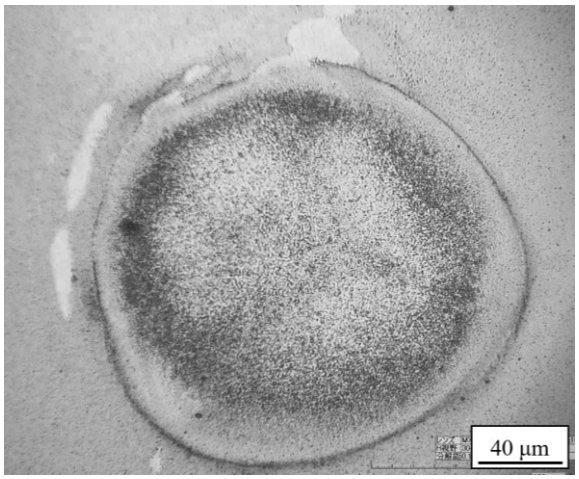
(d) 2 ps. (e) 4 ps. (f) 8 ps.

Fig. 3.3 Optical microscope images of minimum irradiation marks for each pulse width.

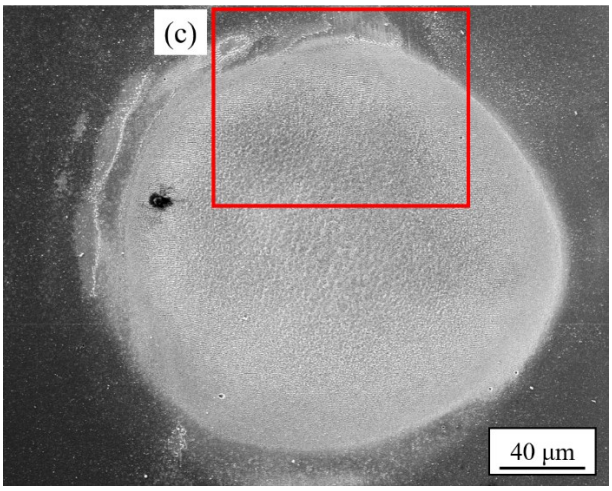
Table 2.4 Measurement of minimum irradiation area radius.

Pulse width	Radius of irradiation marks (μm)
180 fs	81
500 fs	57
1 ps	43
2 ps	38
4 ps	33
8 ps	41

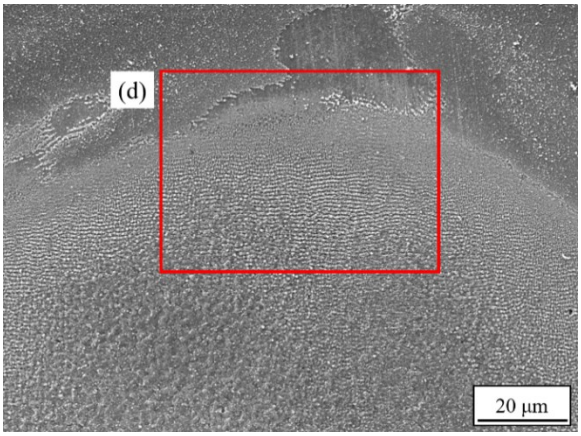
光学顕微鏡による照射痕観察では、金属表層の着色領域で照射痕径を判定した。金属が着色される原因には、レーザ照射による凹凸構造や酸化物堆積、プラズマ輻射熱による酸化物生成、周囲への熱拡散による酸化物生成などの可能性がある。そこで、照射痕をより詳細に観察するために、SEM による照射痕観察を行った。Fig. 3.4(a)に光学顕微鏡による照射痕観察結果を、Fig. 3.4(b)-(d)に SEM による照射痕観察結果を示す。光学顕微鏡観察で見られる円状に着色した領域は、SEM による観察の結果、電場の偏光方向に対して垂直な方向に周期的な凹凸構造が形成される領域であることが分かった。この周期的な凹凸構造は第 1 章で示したレーザ誘起表面周期構造（LIPSS: Laser Induced Periodic Surface Structure）であり、フルエンスが数～数十 mJ/cm^2 程度の弱い超短パルスレーザを照射することによって形成されるものである[20,21]。したがって、光学顕微鏡や SEM 観察で判定される照射痕は、超短パルスレーザ照射そのものによって形成されたものであり、プラズマ輻射熱や酸化物堆積などの二次的な影響によるものではない。



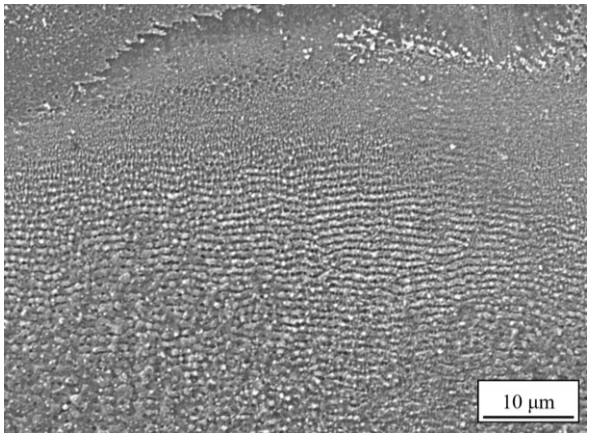
(a) Observation with an optical microscope.



(b) Observation with SEM.



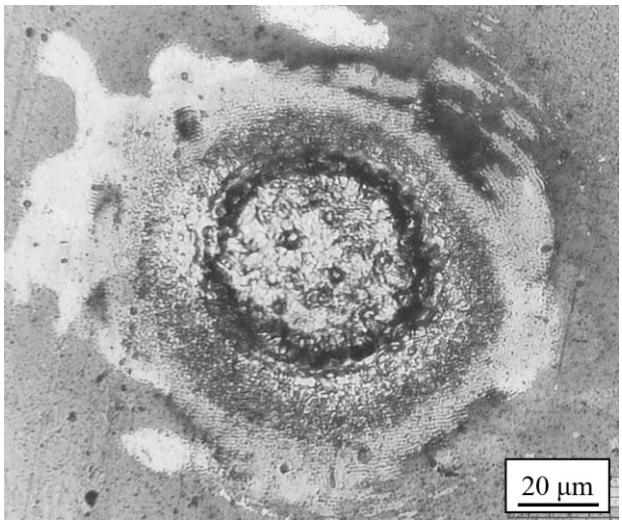
(c) Magnified view of area (c).



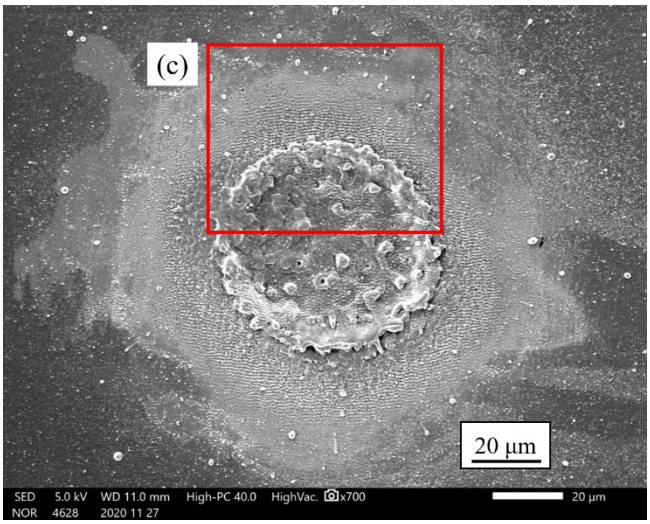
(d) Magnified view of area (d).

Fig. 3.4 Observation of irradiation mark upstream of the focal point.

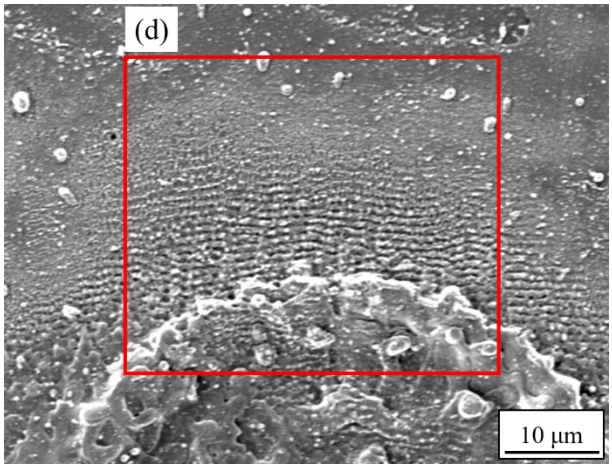
次に、焦点位置付近の照射痕観察結果について、Fig. 3.5(a)-(d)に示す。光学顕微鏡による観察では、デブリが多く堆積し、着色領域が乱れて存在するため、照射痕の判定には誤差が含まれる。一方、SEM 観察では、集光が十分な位置においても中心部のアブレーション領域の外側に LIPSS 形成領域が存在することがわかった。したがって、パルス幅が 1 ps 未満の条件で照射痕径が大きい原因は、レーザ集光特性が変化し、レーザ照射領域が拡大していることに起因する。



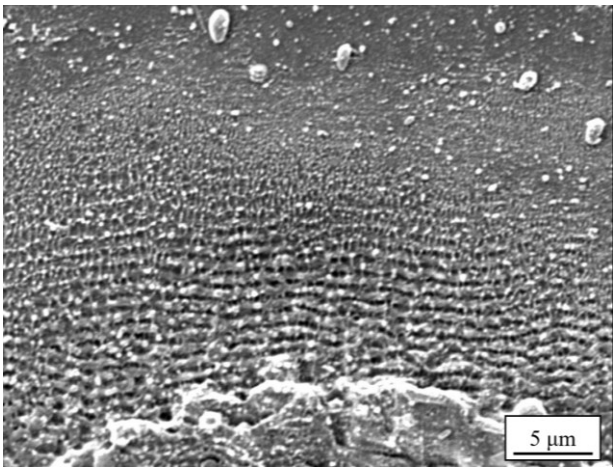
(a) Observation with an optical microscope.



(b) Observation with SEM.



(c) Magnified view of area (c).



(d) Magnified view of area (d).

Fig. 3.4 Observation of irradiation mark upstream of the focal point.

以上のことから、焦点位置近傍でレーザ照射領域推移を実験的に取得した。光学顕微鏡と SEM による観察に生じるわずかな誤差は、照射領域推移の傾向を把握する上で許容範囲内であった。そこで、光学顕微鏡観察により、パルス幅 180 fs、500 fs、1 ps における焦点位置周辺の照射痕半径推移を求めた。焦点位置を中心に、試験片を設置したステージを光軸上で 1 ステップあたり 50 μm で移動させ、前後に数 mm 程度の範囲における照射痕半径を取得した。焦点位置を決定するため、真空中でも同様の実験を行い、照射痕半径推移を取得した。

真空条件では理想的な集光特性と仮定し、焦点位置を求めた。ガウシアンレーザ集光特性は焦点位置を境に対称的であるため、ある点を境に対称の位置にある照射痕半径の誤差を取得し、最小二乗法を用いて照射痕推移が最も対称的となる点を焦点位置とした。真空中と大気中の焦点位置を比較するため、真空中条件でのみレーザ集光途中で通過する厚さ約 1 mm のガラス板の影響を補正する。Fig. 3.5 に示すように、異なる屈折率を持つ厚みdの媒質 2 を通過する場合、焦点位置は元の位置から移動する。Fig. 3.5 は相対屈折率が 1 よりも大きく、焦点位置が媒質 2 よりも外側にある場合を示している。この場合の焦点位置の補正方法は以下の通りである。

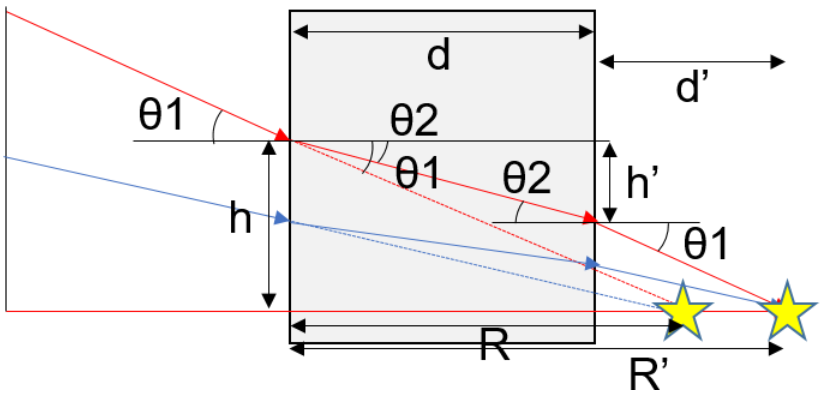


Fig. 3.5 Schematic diagram of rays as they pass through different media on their way to collection.

集光途中で異なる媒質に入射するレーザ光の入射角について、次の式が成り立つ。

$$sin\theta_1 = \frac{h}{\sqrt{(h^2 + R^2)}} \tag{3.2}$$

Snell の法則より、相対屈折率n_{12}を用いると、

$$sin\theta_2 = \frac{1}{n_{12}} sin\theta_1 = \frac{h}{n_{12}\sqrt{(h^2 + R^2)}} \tag{3.3}$$

ガラス側面での第一屈折位置と第二屈折位置の高さの差h'は、

$$h' = dtan\theta_2 \tag{3.4}$$

第二屈折位置から新たな焦点までの距離d'は、

$$d' = \frac{h - h'}{tan\theta_1} \tag{3.5}$$

媒質 2 から新たな焦点までの距離R'は、

$$R' = d + d' = d + \frac{h - dtan\theta_2}{tan\theta_1} = d + R - \frac{dR}{n_{12}\sqrt{n_{12}^2 R^2 + (n_{12}^2 - 1)h^2}} \tag{3.6}$$

以上より、相対屈折率n_{12}、厚みdの媒質 2 を導入した場合の焦点位置のずれ量$R' - R$は次の通りである。

$$R' - R = d - \frac{dR}{n_{12}\sqrt{n_{12}^2 R^2 + (n_{12}^2 - 1)h^2}} \tag{3.7}$$

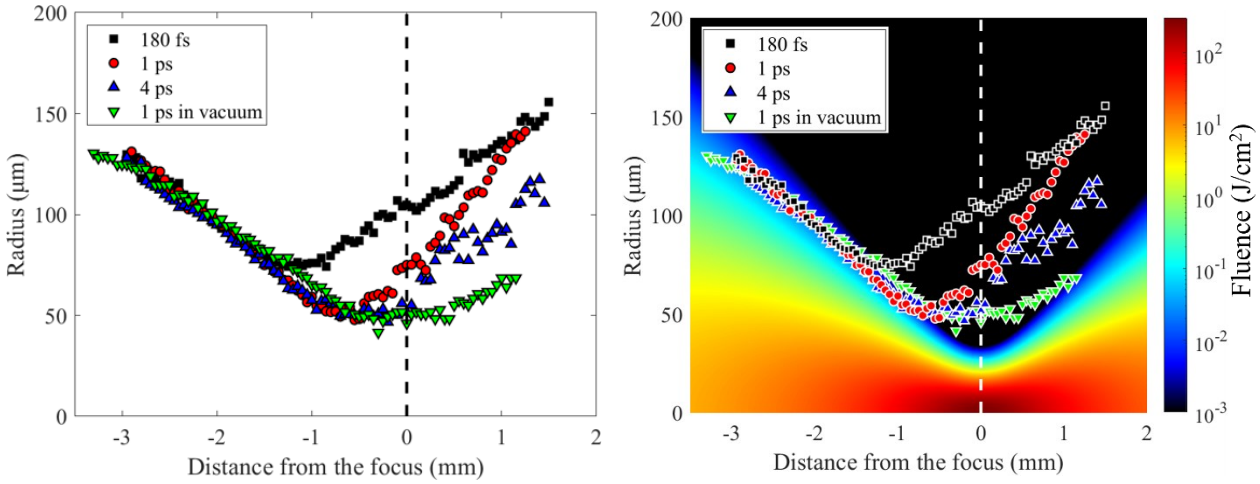
本実験の媒質 2 の条件はdが 1 mm、n_{12}が 1.521 である。この状況下では、焦点位置のずれはレーザの入射位置の高さhに依存するため、焦点ではわずかなぼやけが生じる。真空チャンバーの深さが 20 mm、試験片の高さが 10 mm であるため、ガラス板から試験片表面までの距離は 10 mm である。焦点位置が試験片表面に位置すると仮定したとき、ガラス板を通過するレーザビーム径は約 250 μm である。光軸を通過するレーザの焦点位置は 0.34254 mm 後方にあり、高さ 250 μm を通過するレーザの焦点位置は 0.34257 mm 後方にある。この差はわずか 30 nm であり、ガラス板による焦点位置でのぼやけは無視できるほど小さい。そこで、ガラス板による焦点位置のずれを約 0.35 mm とし、

真空中での実験データと大気中での実験データを比較する際に、このずれを補正した。

大気中でのパルス幅 180 fs、1 ps、4 ps の照射痕半径推移と、真空中でのパルス幅 1 ps における照射痕半径推移を Fig. 3.6(a)に示す。パルス幅 1 ps の大気条件と真空条件の照射痕半径推移を比較すると、上流側の領域では、両者とも同等の照射痕推移を示し、最小の照射痕半径は約 45 μm である。しかし、真空条件ではこの照射痕半径が 1 mm の範囲にわたり続くのに対して、大気条件ではすぐに照射痕半径が広がり始める。そのため、平凸レンズの焦点位置では、既に広がり始めた照射痕が得られることになる。

また、これらの結果を第 1 章で説明した理想的な集光時のフルエンス分布の上に重ねてプロットした結果を Fig. 3.6(b)に示す。真空条件では焦点位置後方でも理想的なフルエンス分布に沿った結果を得られた。ただし、焦点位置では理想集光径よりも大きな実験結果となっているが、これはレーザ装置固有のビーム品質 M2 や光路調整のずれによって生じるものである。実験に使用したレーザ装置 PHAROS では、M2 は 1.3 未満とされるが、M2=1.3 のときに真空条件との整合性が良好であった。上流側での照射領域推移と理想的なフルエンス分布との比較から、約 10 mJ/cm^2 のフルエンスで照射領域が確認できることがわかった。このフルエンスは LIPSS が生成されるための条件と一致しており、レーザ照射領域の正確な計測ができていることを意味する。

大気中では、パルス幅が短い条件ほど上流側で理想的な集光フルエンス分布から逸脱し、レーザの発散が確認できる。パルス幅が比較的長い 4 ps の条件でも、最も集光する位置から後方ではレーザの発散が確認できる。したがって、高強度の超短パルスレーザを使用する際には、大気の存在によってレーザ集光時の照射領域が変化することが示された。また、大気条件下ではパルス幅が短くなるほど、最小照射痕となる位置が焦点位置から上流側に移動し、照射領域が拡大することが示された。これらの結果から、大気条件下ではレーザ強度が高くなるほど、大気の影響によってレーザが発散する傾向が顕著になることが結論される[22,23]。



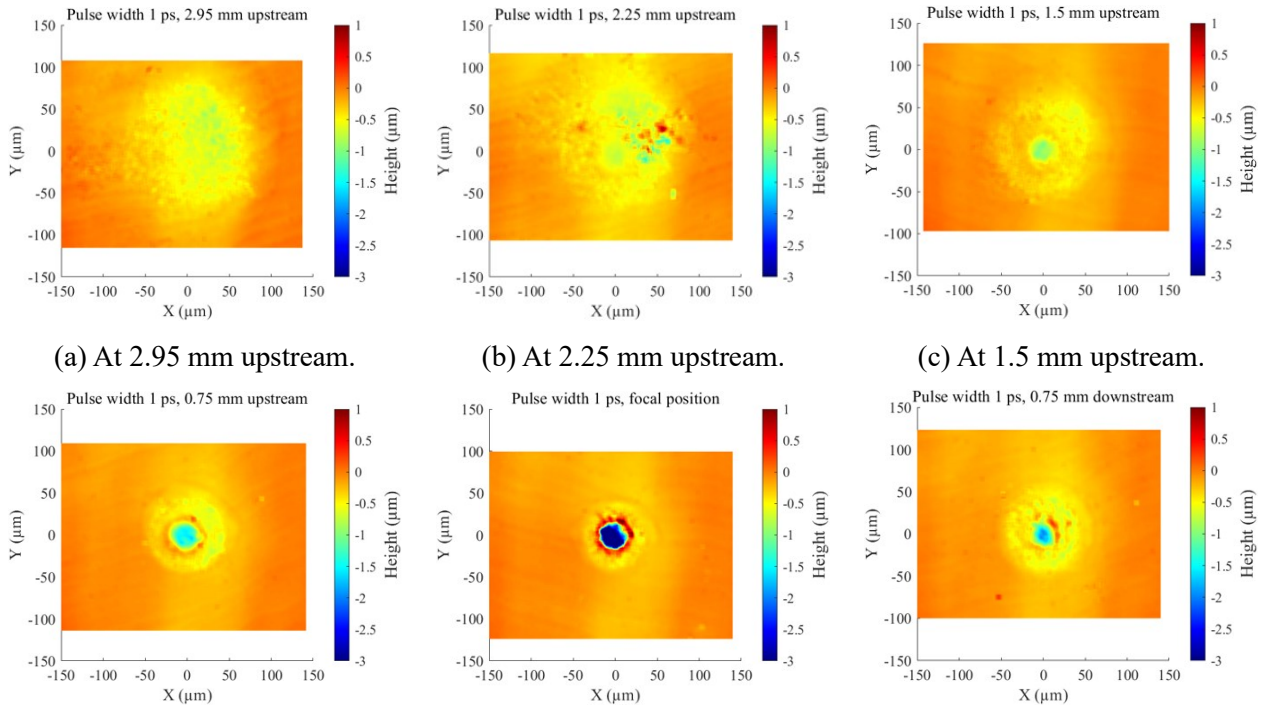
(a) Experimental results at 180 fs, 1 ps, and 4ps. (b) (a) with ideal fluence distribution.

Fig. 3.6 Profile of irradiation area radius transition with SEM.

3-3-2　レーザ顕微鏡によるアブレーション観察結果

レーザ加工において、照射領域推移と同様にアブレーション領域推移も重要である。真空中におけるパルス幅 1 ps 条件と、大気中における 180 fs、1 ps、4 ps の各条件におけるアブレーション分布とその領域推移を示すために、代表的な位置（上流 2.95 mm、2.25 mm、1.5 mm、0.75 mm、焦点位置、下流 0.75 mm）でのアブレーション全体図を、それぞれ Fig. 3.7-3.10 に示す。

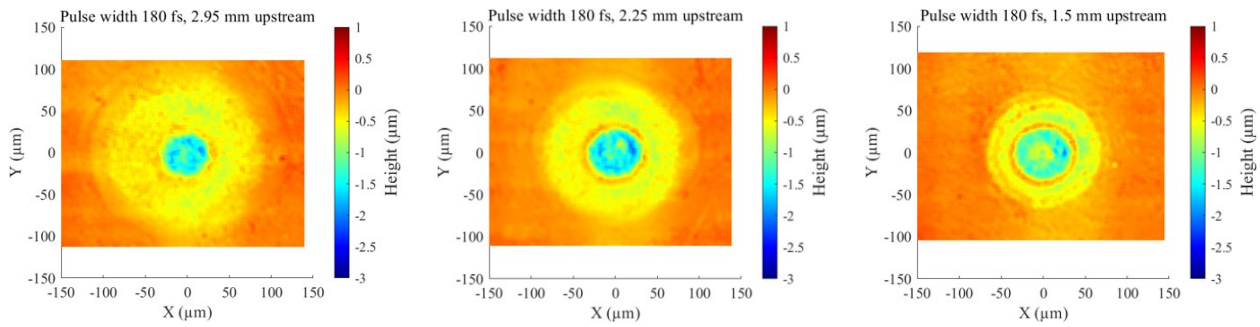
これらの図において、中心部には深いアブレーションが見られ、その周囲にはアブレーション深さ 0.5 μm 未満の弱いレーザ照射領域が存在する。また、アブレーション領域の周囲にはバリが形成され、平坦面よりも凸形状となる。真空中のパルス幅 1 ps 条件（4 回照射）では、上流 1.5 mm からアブレーション深さが増加し、焦点位置で約 4.5 μm のアブレーションが生じる。また、焦点位置で最も外周部のレーザ照射領域が小さい。パルス幅 180 fs 条件（8 回照射）では、上流 2.95 mm から 1 μm 以上のアブレーションが観察されるが、その後焦点位置付近まで集光してもアブレーション深さは増加せず、やや減少する。焦点位置±0.5 mm の範囲でのみアブレーション深さが大きい特徴がある。一方、パルス幅 1 ps 条件（8 回照射）では上流 2.25 mm から徐々にアブレーション深さが増加し、上流 0.75 mm では 3 μm を超えるアブレーションが生じる。さらに、上流 0.75 mm ではアブレーション領域の外側に弱いレーザ照射領域がほとんど生じていない。最後に、パルス幅 4 ps 条件（8 回照射）では、上流 0.75 mm からアブレーションが始まり、焦点位置で最も深いアブレーションが生じる。これにより、大気中では真空条件とは異なるアブレーションの傾向となり、パルス幅に応じて集光時のアブレーション傾向が変化することが示された。



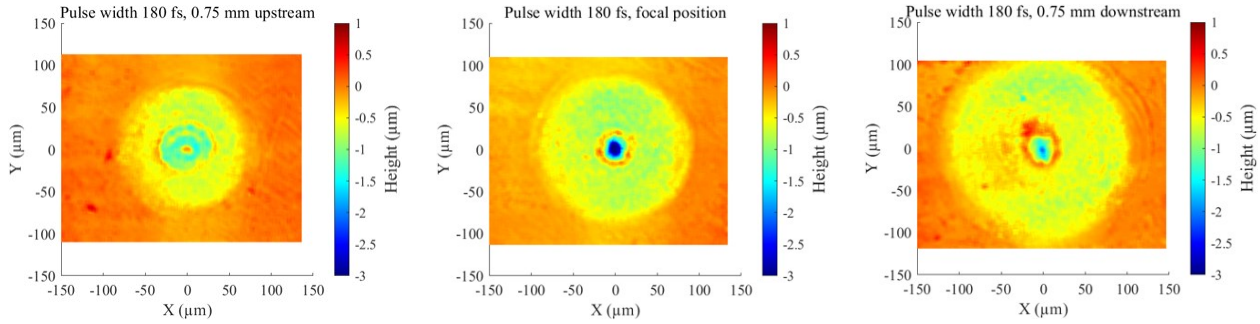
(a) At 2.95 mm upstream.　(b) At 2.25 mm upstream.　(c) At 1.5 mm upstream.

(d) At 0.75 mm upstream.　(e) At the focal point.　(f) At 0.75 mm downstream.

Fig. 3.7 Ablation distribution at each focusing position for a pulse width of 1 ps in vacuum (4 shots).

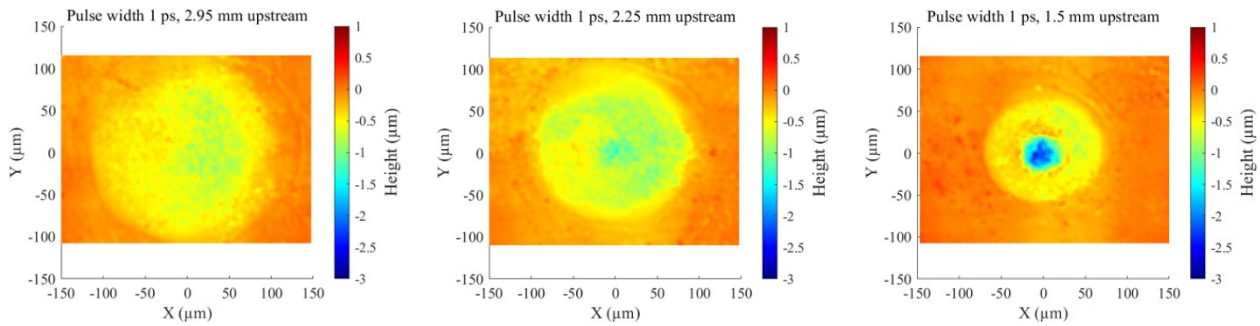


(a) At 2.95 mm upstream. (b) At 2.25 mm upstream. (c) At 1.5 mm upstream.

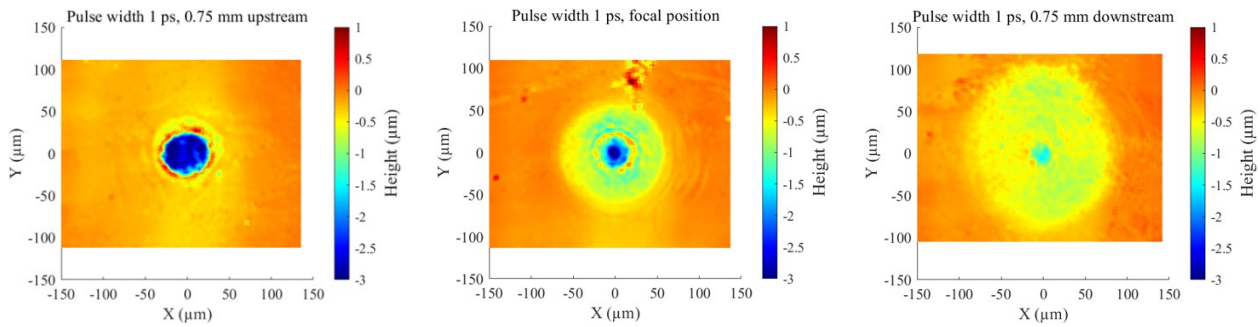


(d) At 0.75 mm upstream. (e) At the focal point. (f) At 0.75 mm downstream.

Fig. 3.8 Ablation distribution at each focusing position for a pulse width of 180 fs (8 shots).

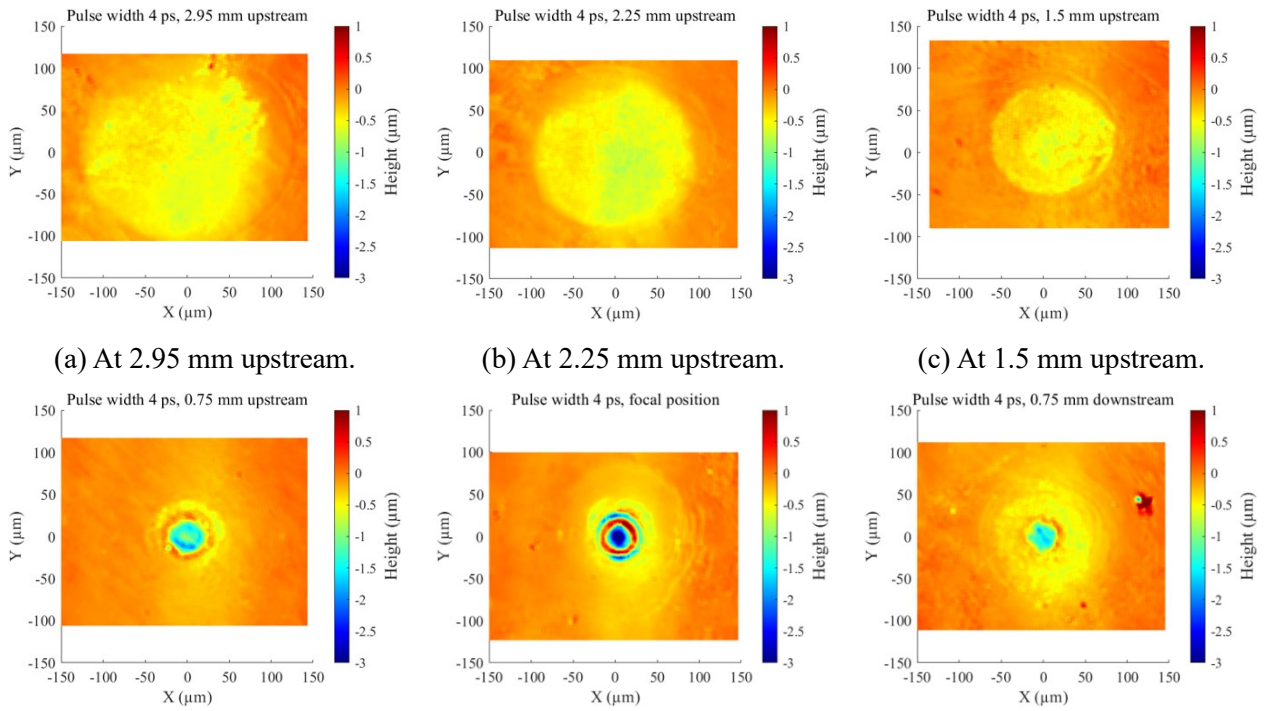


(a) At 2.95 mm upstream. (b) At 2.25 mm upstream. (c) At 1.5 mm upstream.



(d) At 0.75 mm upstream. (e) At the focal point. (f) At 0.75 mm downstream.

Fig. 3.9 Ablation distribution at each focusing position for a pulse width of 1 ps (8 shots).



(a) At 2.95 mm upstream. (b) At 2.25 mm upstream. (c) At 1.5 mm upstream.

(d) At 0.75 mm upstream. (e) At the focal point. (f) At 0.75 mm downstream.

Fig. 3.10 Ablation distribution at each focusing position for a pulse width of 4 ps (8 shots).

次に、上流約 3.0 mm から下流 1.0 mm まで、0.25 mm 間隔で取得したアブレーション分布を伝搬方向にまとめ、各条件におけるアブレーション領域推移を Fig. 3.11(a)-(d)に示す。真空中の 1 ps 条件では、焦点位置で最も深いアブレーションが見られ、対称的なアブレーション分布であった。また、外周部へのレーザ発散も確認されなかった。

大気中のパルス幅 180 fs 条件では、上流 1.5 mm 以降の集光に伴うアブレーション深さの増加が見られなかった。また、レーザ発散位置より後方で半径方向に弱いレーザ照射領域が確認できることから、照射領域推移で示されたように、レーザ発散によりフルエンスが低下していると考えられる。しかしながら、焦点位置±0.5 mm の範囲では外側にレーザ照射領域が存在するにもかかわらず、アブレーション深さが大きい。これについては、プリパルス（プレパルス）やポストパルスの影響の可能性がある。超短パルスレーザは、そのパルス形成方法により、メインパルスの前後に様々なパルス幅のレーザが混入する[24]。Fig. 3.12 に示すように、自然放出光の増幅によるナノ秒プレパルスの発生、非線形結合過程によるフェムト秒プレパルスの発生、メインのパルス幅から 100 ps 程度のペデスタルパルスの発生などが挙げられる。これらを総称してプリパルス、ポストパルスと呼ぶ。レーザ装置ごとに、メインパルスとプリパルスのエネルギー比、メインパルスとポストパルスのエネルギー比はコントラストとして提供されている。

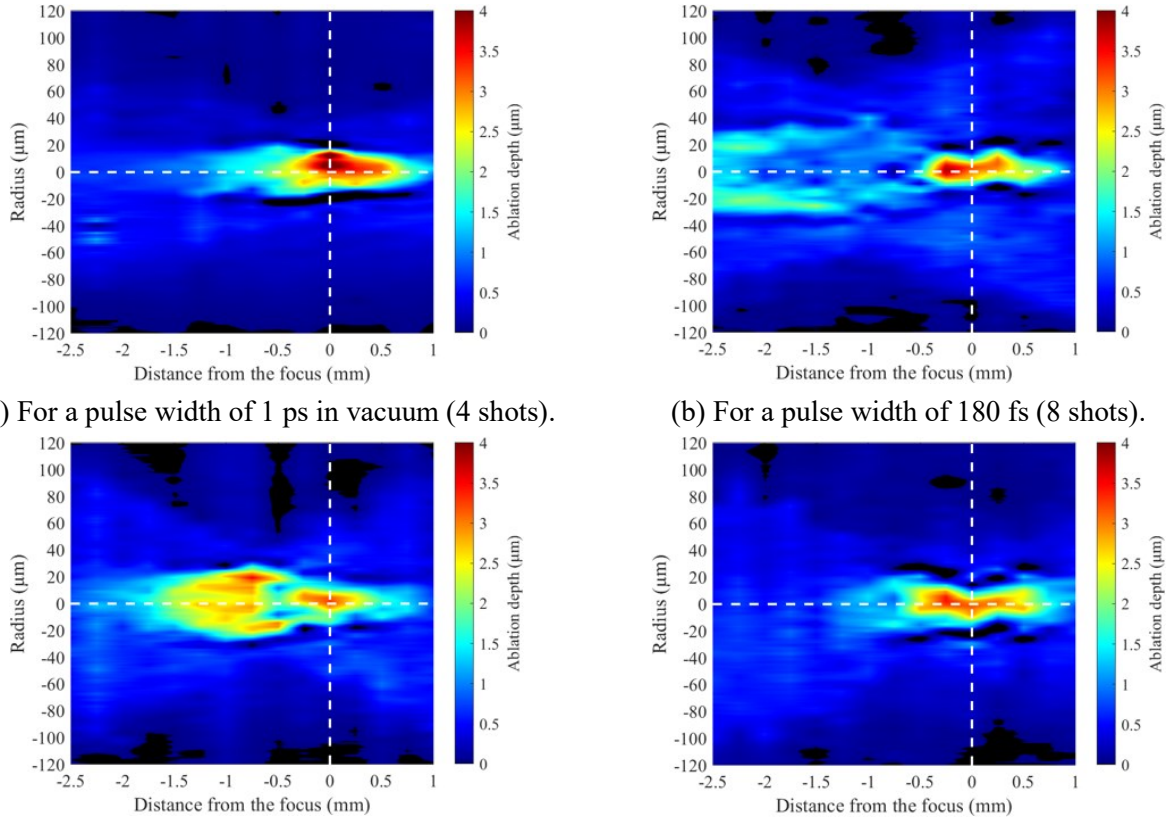
本実験で用いたレーザ装置 PHAROS において、プリパルスコントラストは 0.1%、ポストパルスコントラストは 0.5 %とされている。これらはエネルギーが小さく集光特性変化が生じないため、理想的な焦点位置に集光され、フルエンスを高めることができるため、アブレーションを生じる可能性がある。さらに、アブレーションは GHz バーストモードアブレーションで知られるように、10 ns 程度の間隔でのレーザ照射によりアブレーション効率が向上する特徴がある[25,26]。このた

め、プリパルスやポストパルスによる複数回の照射によってアブレーションが顕著になった可能性がある。また、プリパルスやポストパルスのコントラストはレーザ装置の状態に依存するため、高パルスエネルギー超短パルスレーザ加工においては、これらのコントラストを事前に計測すべきである。

パルス幅 1 ps 条件では、上流 0.75 mm までの集光に伴いアブレーション深さが増加した。上流 0.5 mm からは外周部に弱いレーザ照射領域が広がり、中心部のアブレーション深さが減少し始めた。焦点位置ではアブレーションが顕著でありながら、外周部にはレーザ広がりが確認されるため、メインパルスのフルエンスは高まっていないと考えられる。したがって、パルス幅 180 fs の条件の焦点位置と同様に、プリパルスやポストパルスの影響であると考えられる。

パルス幅 4 ps 条件では、およそ焦点位置で最も深いアブレーションが生じ、対称的なアブレーション分布が観察された。外周部にはレーザ発散が観察されるが、顕著なものではなかった。また、レーザ発散の寄与しない上流側でのアブレーション深さを比較すると、パルス幅が長い条件ほどアブレーション深さが小さいことが分かる。このことから、パルス幅が長くなることでアブレーションのエネルギー効率が低下することが示される。この原因は熱拡散へのエネルギー損失であると考えられる。

以上の結果から、大気中ではフルエンスなどのレーザ集光特性が変化し、アブレーションに影響を与えることが明らかとなった。これらの影響はパルス幅が短く、レーザ強度の高い条件ほど顕著であることが示された。



(a) For a pulse width of 1 ps in vacuum (4 shots).

(b) For a pulse width of 180 fs (8 shots).

(c) For a pulse width of 1 ps (8 shots).

(d) For a pulse width of 4 ps (8 shots).

Fig. 3.11 The transition of ablation area in the propagation direction for each pulse width.

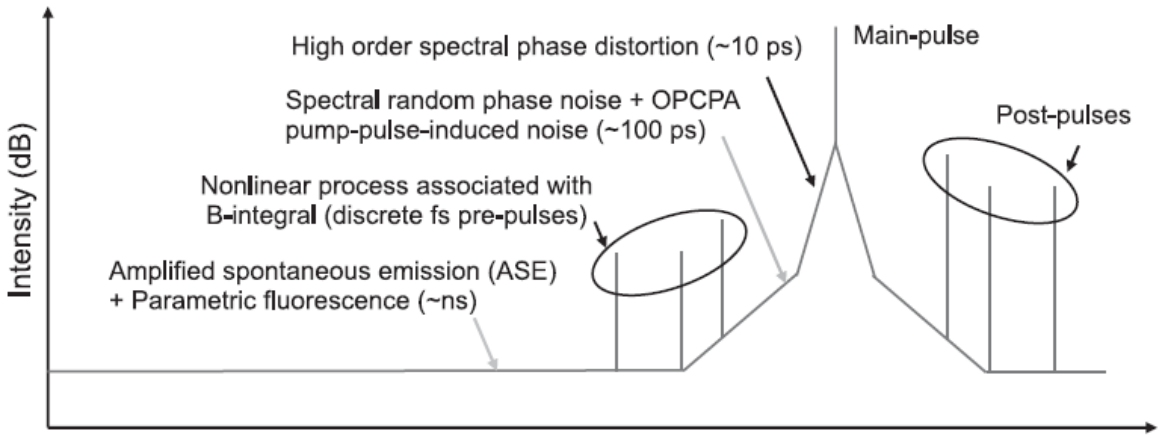


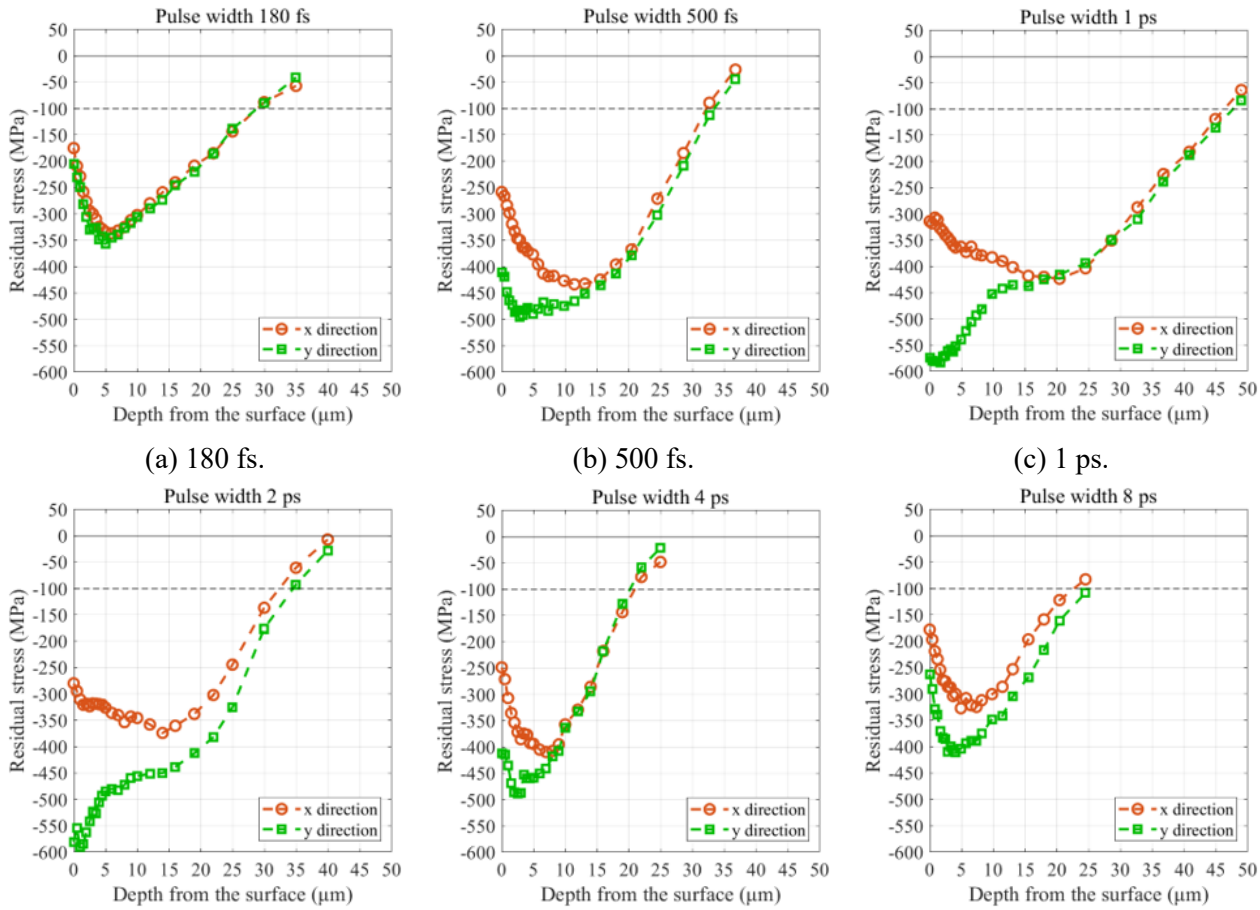
Fig. 3.12 Pre-pulse and post-pulse in CPA laser systems [24].

3-3-3　cosα 法による深さ方向の残留応力分布計測結果

パルス幅 180 fs、500 fs、1 ps、2 ps、4 ps、8 ps の各条件でピーニングを行い、cosα 法による深さ方向の残留応力分布を測定した結果を Fig. 3.13(a)-(f)に示す。カバレージは 4000%に統一する予定であったが、後にアブレーション径を厳密に計測すると、カバレージは 2000%から 4400%程度までばらつきを生じた。負の値は圧縮残留応力を、正の値は引張残留応力を示す。パルス幅は 1 ps や 2 ps の条件で良好な圧縮残留応力分布が得られており、180 fs や 8 ps の条件はピーニングに適していない。

さらに、ピーニング条件ごとに比較するため、表層の圧縮残留応力値、圧縮残留応力が付与された深さ、x 方向および y 方向の残留応力分布をそれぞれ Fig. 3.14(a)-(d)に示す。ここでは、圧縮残留応力が 100 MPa 以上付与された深さを記載する。Fig. 3.14(a)より、表層の圧縮残留応力値はパルス幅 1 ps、2 ps の条件で最大である。Fig. 3.14(b)より、同条件で圧縮残留応力付与深さが最大である。この結果から、本実験においてはパルス幅 1~2 ps が最適なピーニング条件であり、フェムト秒パルスよりもパルス幅を長く設定したほうがピーニング効果が向上する。また、Fig. 3.14(c)より、x 方向の圧縮残留応力は表層でやや緩和される。一方で、Fig. 3.14(d)より、y 方向の圧縮残留応力はパルス幅 180 fs、500 fs、4 ps、8 ps 条件では表層で緩和が生じるが、パルス幅 1 ps、2 ps 条件では最表層で最も高い圧縮残留応力値を記録し、緩和・引張傾向はほとんど見られず、良好なピーニング結果である。

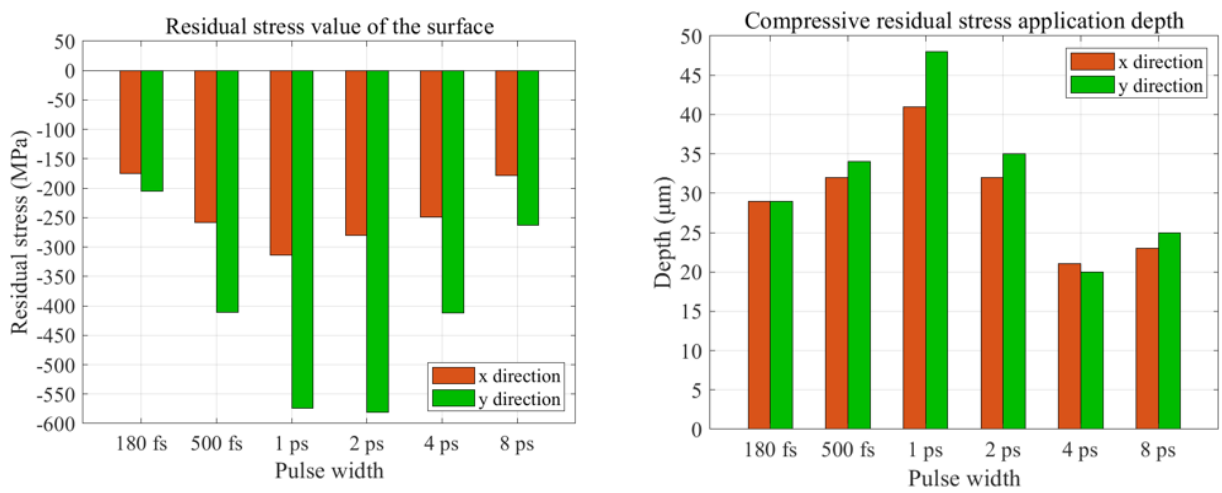
このような xy 方向依存性は、コーティングの有無にかかわらずナノ秒レーザピーニングでも実験的に確認されており、有限要素法による数値シミュレーションを用いてその理由は解明されている[27-29]。超短パルスレーザ照射時においても周囲への圧縮残留応力付与や照射領域の引張残留応力付与は同様に生じるため、xy 方向依存性が生じることは避けられない。x 方向の圧縮残留応力分布も強化するためには、x 方向と y 方向で異なる照射間隔とする方法が提案されている[28]。



(a) 180 fs. (b) 500 fs. (c) 1 ps.

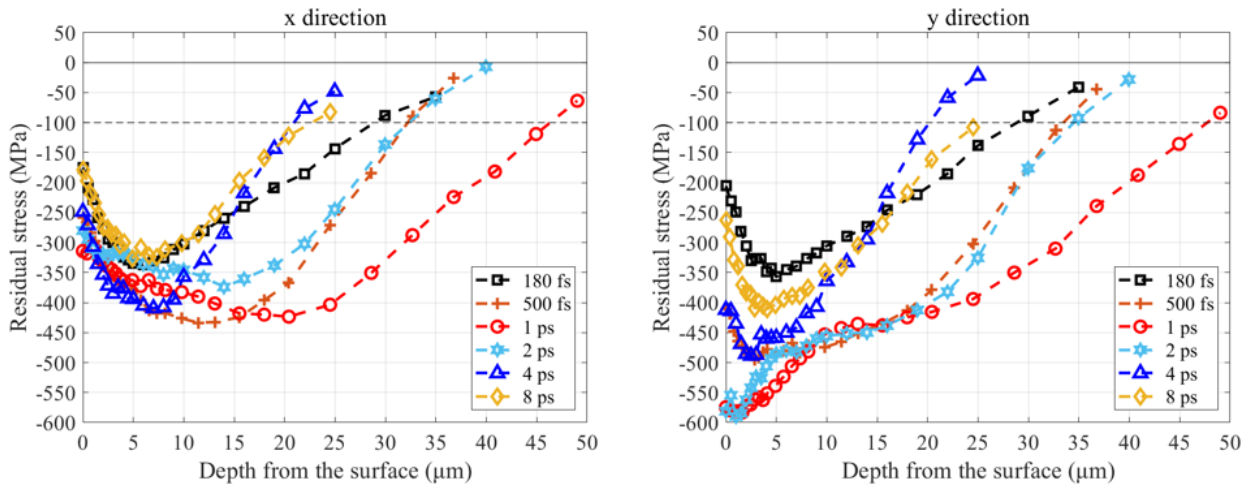
(d) 2 ps (e) 4 ps (f) 8 ps.

Fig. 3.13 Depth profile of residual stress measurement of each pulse width.



(a) Residual stress value of the surface. (b) Compressive residual stress depth.

Fig. 3.14 Comparison of pulse width dependent residual stress profiles.



(c) Residual stress in the x direction.　　(d) Residual stress in the y direction.

Fig. 3.14 Continued.

3-4　考察

3-4-1　照射領域推移、アブレーション領域推移のパルス幅依存性

大気中では、パルス幅が短い条件ほど超短パルスレーザ集光特性が変化した。真空中では集光特性に変化が生じないことから、大気の存在がレーザ集光特性に影響を及ぼす。パルス幅が短い条件はレーザ強度が高くなるため、集光の過程で大気の非線形光学現象の影響を受け、集光特性が変化することが示唆される。ガウシアンレーザ理想集光時のピーク強度は第 2 章で説明した通り、次の式から計算できる。

$$I_0 = \frac{2J_{all}}{\pi\omega_f^2\tau_p}\sqrt{\frac{2}{\pi}} \tag{3.8}$$

本実験におけるピーク強度を求めると、パルス幅 180 fs 条件では 1.5×10^{15} W/cm^2、パルス幅 500 fs 条件では 5.4×10^{14} W/cm^2、パルス幅 1 ps 条件では 2.7×10^{14} W/cm^2、パルス幅 2 ps 条件では 1.3×10^{14} W/cm^2、パルス幅 4 ps 条件では 6.7×10^{13} W/cm^2、パルス幅 8 ps 条件では 3.4×10^{13} W/cm^2 である。大気の絶縁破壊閾値は 10^{13}~10^{14} W/cm^2 であるため、これらの条件は集光過程で大気を電離できる。特に、パルス幅 1 ps 以下の条件では大気の電離が顕著となり、レーザ集光特性に大きな変化を引き起こすと考えられる。大気の非線形光学現象によるレーザ集光特性変化については、第 4 章で詳細に説明する。

3-4-2　ピーニング効果に及ぼすパルス幅の影響

パルスエネルギーを統一した本実験において、最も有効なピーニング効果を得られた条件はパルス幅 1 ps 条件であった。これはパルス幅の短い領域ではレーザ集光特性変化によるフルエンスの低下が、一方でパルス幅の長い領域では熱影響が原因であると考えられる。

パルス幅 180 fs、1 ps、4 ps の各条件における最集光位置の一次元アブレーション分布を Fig. 3.15 に示す。パルス幅 180 fs 条件はパルス幅 1 ps 条件と比較してアブレーション径が大きく、ピーニング時には 1 ps 条件よりも照射回数が少ない。一方で、アブレーション深さは 4 割以下であるため、1 発あたりの衝撃力が小さく、材料表層の塑性変形量の合計が小さいと考えられる。パルス幅 1 ps

条件では、圧縮残留応力分布に表層の緩和が見られず、適切なカバレージにより十分な塑性変形を得られたと考えられる。一方、パルス幅 180 fs や 500 fs 条件では、圧縮残留応力分布に表層の緩和が見られており、塑性変形量が不足している可能性がある。したがって、レーザ集光特性変化によりアブレーション深さが変化する実験条件では、カバレージを統一しても塑性変形量は統一されないため、有効な指標とはならない。アブレーション深さが小さな条件ではさらにカバレージを高める（照射回数を増やす、照射間隔を小さくする）必要があると考えられる。また、パルス幅 180 fs 条件ではアブレーション径の定義が不十分であり、ピーニング時のカバレージは 2000%であったため、照射密度の不足もやや影響したと考えられる。さらに、パルス幅の短い条件での表層の緩和については、アブレーション領域の外側に弱いレーザ照射領域が広く存在することが熱影響の要因となった可能性も考えられる。

パルス幅 4 ps 条件では、アブレーション深さは十分大きいが、アブレーション径の周囲にバリが生じている。金属の超短パルスレーザアブレーションにおいて、数ピコ秒を境に熱拡散が生じることがよく知られており、それによって溶融領域が増加したと考えられる。溶融凝固領域は引張残留応力を生じるため、表層の圧縮残留応力が緩和されたと考えられる。また、レーザエネルギーを熱拡散に使われることで、衝撃波へのエネルギー変換効率が低下し、塑性変形量が低下すると考えられる。

以上の結果から、高フルエンス領域での超短パルスレーザ加工およびドライレーザピーニングにおいて、パルス幅が短い条件では大気の非線形光学現象によるレーザ集光特性変化を考慮する必要がある。一方、パルス幅が長い条件では熱拡散による加工品質の劣化が生じるため、ドライレーザピーニングには数ピコ秒以上のパルスは不適切であると結論できる。

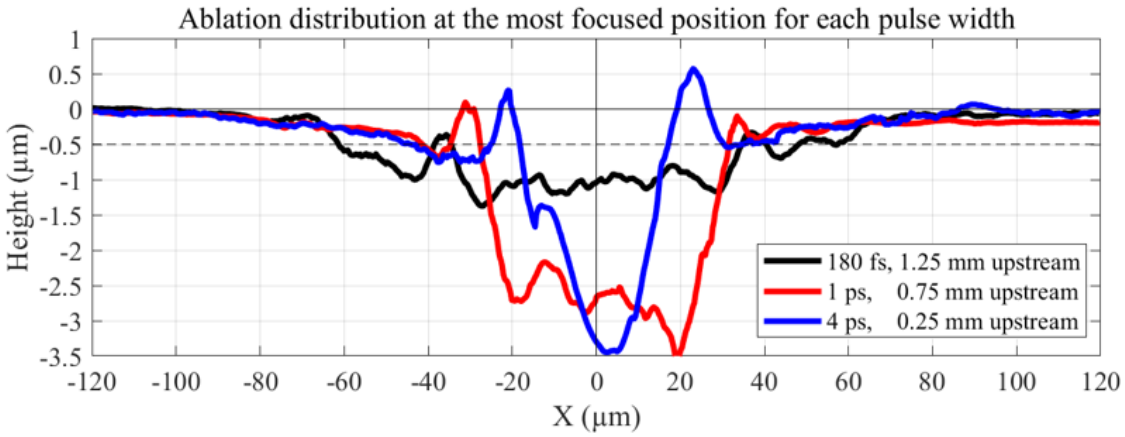


Fig. 3.15 Ablation distribution at the most focused position for each pulse width.

3-5　結言

本章では、大気の電離閾値を超える強度、フルエンス領域の超短パルスレーザ加工におけるフェムト秒からピコ秒領域のパルス幅依存性に関する研究を行い、以下の結果を得た。

1. 大気中での高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工において、大気の存在によってレーザ照射痕の拡大が引き起こされることが示された。レーザ照射痕の拡大は、プラズマの輻射熱やアブレーションによって発生するデブリなどの二次的な影響ではなく、超短パルスレーザの照射領域の拡大によって生じた。
2. パルス幅が短い条件ほど、レーザ集光位置は上流側に移動し、レーザ照射領域推移やアブレーション領域推移の変化が観察された。レーザ発散に伴い、アブレーション深さは顕著に減少した。この変化の原因は、レーザ集光過程で大気の電離閾値を超える高いレーザ強度が生じ、それに伴い大気の非線形光学現象の影響を受けたためと考えられた。
3. パルス幅が長い条件ほど、同等のフルエンスに対するアブレーション深さが低下しており、アブレーションのエネルギー効率の低下が観察された。これに伴い、パルス幅の長い条件では衝撃影響の低下や熱影響の増加が生じると考えられる。
4. 大気の非線形光学現象によるレーザ発散が顕著な条件下で、焦点位置での深いアブレーションが観察された。この現象は、超短パルスレーザを形成する際に生じるプリパルスやポストパルスが原因と考えられた。微弱なエネルギーを持つプリパルスは焦点位置に線形に集光可能であるため、焦点位置でのアブレーションを引き起こすと考えられる。
5. フェムト秒パルス条件でのドライレーザピーニングでは、圧縮残留応力分布の表層に引張方向への緩和が観察された。これは、レーザが集光過程で発散することでフルエンスが低下し、衝撃影響が低減したことが原因と考えられる。また、アブレーション深さが異なるため、カバレージの統一は塑性変形量の統一には至らず、レーザ照射回数が不十分であった可能性が考えられる。アブレーション深さの小さい条件でのピーニング加工においては、より高いカバレージが必要である。
6. 高フルエンス領域の数ピコ秒パルス条件では、アブレーションのエネルギー効率が低下し、熱影響が生じ、圧縮残留応力分布の表層に緩和が観察された。熱拡散にエネルギーを消費され、衝撃影響が低減するため、圧縮残留応力の付与領域が浅くなったと考えられる。したがって、数ピコ秒以上のパルスレーザによるドライレーザピーニングは不適切であると結論できる。
7. 大気の電離閾値を超える高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工において、パルス幅はピーニング効果に影響を及ぼすことが示された。フェムト秒パルス条件では大気の非線形光学現象によるレーザ集光特性変化が生じ、一方、ピコ秒以上のパルス幅では熱影響が生じるため、最適な加工を行うにはパルス幅の適切な選択が必要である。最適条件は照射可能なフルエンスと熱影響のバランスによって決まると考えられる。本実験条件におけるドライレーザピーニングでは、パルス幅 1 ps 条件で最も良好な圧縮残留応力分布を得られた。
8. 等しいフルエンスを照射可能な条件下では、アブレーションやピーニング加工において、熱影響を抑制できるフェムト秒パルス条件が効果的であると考えられる。以上より、レーザパラメータや集光条件ごとに照射可能なフルエンスを理解することは重要であり、大気の非線形光学現象を考慮した超短パルスレーザ集光特性の理解が不可欠である。

参考文献

[1] B. N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. von. Alvensleben, and A. Tünnermann, “Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids”, Appl. Phys. A, Vol. 63, No. 109, pp. 109-115 (1996).

[2] S. Nolte, C. Momma, H. Jacobs, A. Tünnerman, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen, and H. Welling, “Ablation of metals by ultrashort laser pulses”, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 14, No. 10, pp. 2716-2722 (1997).

[3] A. Ostendorf, G. Kamlage, U. Klug, F. Korte, and B. N. Chichkov, “Femtosecond versus picosecond laser ablation”, Proc. of SPIE, Vol. 5713, pp. 1-8 (2005).

[4] T. Sano, T. Eimura, R. Kashiwabara, T. Matsuda, Y. Isshiki, and A. Hirose, “Femtosecond laser peening of 2024 aluminum alloy without a sacrificial overlay under atmospheric conditions”, J. Laser Appl., Vol. 29, No. 012005 (2017).

[5] C. Momma, S. Norte, B. N. Chichkov, F. von Alvecnsleben, A. Tünnermann, H. Welling, and B. Wellegehausen, “Short-pulse laser ablation of solid targets”, Opt. Commun., Vol. 129, No. 134 (1996).

[6] M. Hashida, A. F. Semerok, O. Gobert, G. Petite, Y. Izawa, and J. F-. Wagner, “Ablation threshold dependence on pulse duration for copper”, Appl. Surf. Sci., Vol. 197-198, pp. 862-867 (2002).

[7] B. H. Christensen, K. Vestentoft, and P. Balling, “Short-pulse ablation rates and the two-temperature model”, Appl. Surf. Sci., Vol. 253, pp. 6347-6352 (2007).

[8] S. Nolte, C. Momma, H. Jacobs, A. Tünnerman, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen, and H. Welling, “Ablation of metals by ultrashort laser pulses”, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 14, No. 10, pp. 2716-2722 (1997).

[9] C. Momma, S. Norte, B. N. Chichkov, F. von Alvecnsleben, A. Tünnermann, H. Welling, and B. Wellegehausen, “Short-pulse laser ablation of solid targets”, Opt. Commun., Vol. 129, No. 134 (1996).

[10] K. Furusawa, K. Takahashi, H. Kumagai, K. Midorikawa, and M. Obara, “Ablation characteristics of Au, Ag, and Cu metals using a femtosecond Ti:sapphire laser”, Appl. Phys. A, Vol. 69, pp. 359-366 (1999).

[11] J. Lopez, R. Kling, R. Torres, A. Lidolff, M. Delaigue, S. Ricaud, C. Hönninger, and E. Mottay, “Comparison of picosecond and femtosecond laser ablation for surface engraving of metals and semiconductors”, Proc. of SPIE, Vol. 8243, No. 82430O (2012).

[12] J. Byskov-Nielsen, J-M. Savolainen, M. S. Christensen, and P. Balling, “Ultra-short pulse laser ablation of copper, silver and tungsten: experimental data and two-temperature model simulations”, Applied Physics A, Vol. 103, pp. 447-453 (2011).

[13] D. Perez and L. J. Lewis, “Molecular-dynamics study of ablation of solids under femtosecond laser pulses”, Phys. Rev. B, Vol. 67, No. 184102 (2003).

[14] L. J. Lewis, and D. Perez, “Laser ablation with short and ultrashort laser pulses: Basic mechanisms from molecular-dynamics simulations”, Appl. Surf. Sci., Vol. 255, pp. 5101-5106 (2009).

[15] R. Le Harzic, D. Breitling, M. Weikert, S. Sommer, C. Fohl, F. Dausinger, S. Valette, C. Donnet, E. Audouard, “Ablation comparison with low and high energy densities for Cu and Al with ultra-short laser pulses”, Appl. Phys. A, Vol. 80, pp. 1589-1593 (2005).

[16] J. Sun and P. Longtin, “Effects of a gas medium on ultrafast laser beam delivery and materials processing”, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 21, No. 5, pp. 1081-1088 (2004).

[17] S. Lei, G. Yang, X. Wang, S. Chen, A. Prieb, and J. Ma, “High energy femtosecond laser peening of 2024 Aluminum alloy”, Proc. CIRP, Vol. 74, pp. 357-361 (2018).

[18] I. A. Artyukov, D. A. Zayaniy, A. A. Ionin. S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, and P. N. Saltuganov, “Relaxation Phenomena in Electronic and Lattice Subsystems on Iron Surface during Its Ablation by Ultrashort Laser Pulses”, JETP Lett., Vol. 99, No. 1, pp. 51-55 (2014).

[19] K. Tanaka, “The cosα method for X-ray residual stress measurement using two-dimensional detector”, Mech. Eng. Rev., Vol. 6, No. 1 (2019).

[20] S. Sarbada, Y. C. Shin, “Superhydrophobic contoured surfaces created on metal and polymer using a femtosecond laser”, Appl. Sur. Sci., Vol. 405, pp. 465-475 (2017).

[21] D. Huerta-Murillo, A. García-Girón, J. M. Romano, J. T. Cardoso, F. Cordovilla, M. Walker, S. S. Dimov, J. L. Ocaña, “Wettability modification of laser-fabricated hierarchical surface structures in Ti-6Al-4V titanium alloy”, Appl. Surf. Sci., Vol. 463, pp. 838-846 (2019).

[22] W. Hu, Y. C. Shin, and G. King, “Effect of air breakdown with a focusing lens on ultrashort laser ablation”, Appl. Phys. Lett., Vol. 99, No. 234104 (2011).

[23] C. Pasquier, M. Sentis, O. Utéza, and N. Sanner, “Predictable surface ablation of dielectrics with few-cycle laser pulse even beyond air ionization”, Appl. Phys. Lett. Vol. 109, No. 051102 (2016).

[24] H. Kiriyama, “Temporal Contrast Improvement in the J-KAREN-P Laser”, J. Plasma Fusion Res., Vol. 97, No. 3, pp. 145-147 (2021).

[25] C. Kerse, H. Kalaycıoğlu, P. Elahi, B. Cetin, D. K. Kesim, Ö. Akcaalan, S. Yavas, M. D. Asık, B. Öktem, H. Hoogland, R. Holzwarth, and F. Ö. Ilday, “Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses”, Nature, Vol. 537, pp. 84-89 (2016).

[26] F. Caballero-Lucas, K. Obata, and K. Sugioka, “Enhanced ablation efficiency for silicon by femtosecond laser microprocessing with GHz bursts in MHz bursts(BiBurst)”, Int. J. Extrem. Manuf., Vol. 4, No. 015103 (2022).

[27] P. Peyre, N. Hfaiedh, H. Song, V. Ji, V. Vignal, W. Seiler, and S. Branly, “Laser shock processing with two different laser sources on 2050-T8 aluminum alloy”, Int. J. Struct. Integr., Vol. 2, No. 1, pp. 87-100 (2011).

[28] Y. Sano, K. Akita, and T. Sano, “A Mechanism for Inducing Compressive Residual Stresses on a Surface by Laser Peening without Coating”, Metals, Vol. 10, No. 816 (2020).

[29] J. Kaufman, Z. Špirit, V. K. Vasudevan, M. A. Steiner, S. R. Mannava, J. Brajer, L. Pina, and T. Mocek, “Effect of Laser Shock Peening Parameters on Residual Stresses and Corrosion Fatigue of AA5083”, Metals, Vol. 11, No. 1635 (2011).

第 4 章　大気の電離閾値を超えるフェムト秒-ピコ秒パルスレーザ集光特性に及ぼす大気の非線形光学現象の影響

4-1　緒言

大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ加工では、大気の非線形光学現象の影響を受け、集光特性の変化を生じる。この現象は第 3 章で実験的に検討され、パルス幅に応じて加工特性が変化し、適切なパルス幅条件や照射位置制御が必要であることが示された。特に、高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工においては、パルスエネルギーやパルス幅、開口数の条件に応じた集光特性変化の解明は重要な課題である。

数 μJ 以上のパルスエネルギーを持つ超短パルスレーザは、焦点距離数十 mm のレンズで集光すると、高いレーザ強度を示し、光カー効果[1-3]や大気の電離[4-6]などの非線形光学現象を引き起こす。これらの現象は、大気中や透明材料中のレーザ伝搬に影響を与え、フルエンス分布などの集光特性を変化させ、加工効率や品質の低下を招くことが知られている[7-9]。レーザピーニングなどで使用される mJ 級のパルスエネルギーの超短パルスレーザは、集光過程で非線形光学現象の影響が大きく、集光特性変化は避けられない。

大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ伝搬の数値シミュレーションには、第 2 章で説明した非線形伝搬計算[10,11]が用いられる。非線形シュレディンガー方程式の数値計算を通じて、回折や分散などの線形効果に加えて、光カー効果や大気の電離、プラズマによる吸収、発散などの非線形光学効果が考慮される。大気プラズマ生成はレーザ電離と衝突電離を取り入れた電子のレート方程式を解くことによって達成される。第 1 章で示したように、レーザ場による大気の電離論は 1960 年代から研究され、実験結果とよく一致する計算方法が考案されている[12,13]。これらのシミュレーションは、レーザフィラメンテーションとして知られる、焦点距離がメートルオーダーの特殊な超短パルスレーザ伝搬現象を再現することに成功している[14-17]。一方で、超短パルスレーザ加工のような数十 mm 程度の短い焦点距離、高い開口数（NA）を持つ集光特性のシミュレーションは限られている。レーザフィラメンテーション分野では、高 NA 条件で大気の電離が支配的な役割を持つことが広く認められている[18-20]。また、パルス幅が長い条件では、到達可能なフルエンスが高くなることも理解されている[21,22]。しかしながら、NA やパルス幅に応じた到達可能なレーザ強度やフルエンスは断片的な理解にとどまり、各条件に応じた非線形伝搬計算の実行が必要不可欠な状況にある。超短パルスレーザ加工において、到達可能なレーザ強度やフルエンスは加工特性を左右する重要な指標であるため、NA やパルス幅に応じた集光特性を網羅的に理解することが重要である。

実際に、超短パルスレーザ加工分野において、非線形伝搬計算を活用した研究がいくつか報告されている[23-26]。これらの研究では、NA やパルス幅、パルスエネルギーは一つに限定され、集光特性や加工特性の網羅的な理解には至っていない。文献 26 ではパルスエネルギー依存性を解明しているが、その範囲は 2~34 μJ であり、低フルエンス領域の研究である。さらに、これらの研究は焦点位置での加工に主眼が置かれており、集光時のフルエンス分布やレーザ照射位置を変えた加工には言及されていない。レーザピーニングのような高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工においては、焦点位置だけでなく集光時のフルエンス分布を含めた議論が必要である。

本章では、mJ級のパルスエネルギーを用いた超短パルスレーザ加工における集光特性を解明し、支配的な非線形光学現象を明らかとする。フェムト秒からピコ秒のパルス幅に対応する非線形伝搬計算を行い、集光特性変化におけるパルス幅の影響を明らかとする。計算結果の妥当性を評価するために第3章で明らかとなった照射領域やアブレーション領域の推移と比較するほか、自己位相変調による周波数スペクトル変化との比較を行った。パルス幅ごとの支配的な非線形光学現象の理解と集光特性の可視化は、レーザ加工条件の最適化と加工結果の予測に必要不可欠である。

4-2　実験・計算方法

4-2-1　大気の非線形光学現象によるレーザ波長変化計測

I. 大気の非線形光学現象による自己位相変調

大気の非線形光学現象による空間的な屈折率変化はレーザ集光時の強度分布・フルエンス分布に影響を及ぼし、時間的な屈折率変化はレーザの周波数スペクトル（波長スペクトル）に影響を及ぼす。これは非常に幅広い波長スペクトルを持つスーパーコンティニューム光の発生や、コニカルエミッションに応用される[27,28]。自己位相変調を簡単に説明する。z方向に伝搬する中心角周波数ω_0の平面波を考える。このとき、中心波数ベクトル$k_0(t)$は屈折率を含むため、これを時間に依存する関数として考える。

$$E(z,t) = \frac{1}{2}E_0\, exp\{i(k_0(t)z - \omega_0 t)\} + c.c. \tag{4.1}$$

$$k_0(t) = \frac{\omega_0}{c}n(t) \tag{4.2}$$

z方向に距離Lだけ伝搬したとき、(4.1)の位相項ϕは、

$$\phi = k_0(t)L - \omega_0 t \tag{4.3}$$

角周波数の定義は単位時間あたりの位相変化量であるから、微小時間あたりの微小位相変化量を瞬時周波数$\omega(t)$と定義すると、

$$\omega(t) = -\frac{\partial\phi}{\partial t} = \omega_0 - L\frac{\partial k_0(t)}{\partial t} = \omega_0 - L\frac{\omega_0}{c}\frac{\partial n(t)}{\partial t} = \omega_0 + \delta\omega(t) \tag{4.4}$$

$$\delta\omega(t) = -L\frac{\omega_0}{c}\frac{\partial n(t)}{\partial t} \tag{4.5}$$

ただし、屈折率の時間変化が生じないときに中心角周波数になるように負号を与えた。$\delta\omega(t)$は周波数変化量である。これより、瞬時周波数は屈折率の時間方向の傾きに応じて変動する。時間経過とともに屈折率が高まるとき$\delta\omega(t) < 0$、時間経過とともに屈折率が小さくなるとき$\delta\omega(t) > 0$となる。このように光パルスが媒質の屈折率を変化させ、光パルス自体の位相を変調させる現象を自己位相変調と呼ぶ。

光カー効果による屈折率変化n_{Kerr}は、カー指数n_2とレーザ強度Iに依存するため、

$$n_{Kerr}(t) = n_0 + n_2 I(t) \tag{4.6}$$

レーザ強度の時間変化を一般的なガウシアンレーザと仮定し、屈折率の時間微分を取ると、

$$I(t) = exp\left(-\frac{2t^2}{t_p^2}\right) \tag{4.7}$$

$$\frac{\partial n_{Kerr}(t)}{\partial t} = n_2 \frac{\partial I(t)}{\partial t} = -n_2 \frac{4t}{t_p^2} exp\left(-\frac{2t^2}{t_p^2}\right) \tag{4.8}$$

これより、パルスレーザ前半の時間$t < 0$では、$\delta\omega(t) < 0$であり、瞬時周波数は下がる。波長スペクトルは正の方向に広がるため、レッドシフトとも言う。パルスレーザ後半の時間$t > 0$では、$\delta\omega(t) > 0$であり、瞬時周波数は上がる。波長スペクトルは負の方向に広がるため、ブルーシフトとも言う。このように、光カー効果は周波数スペクトルを正方向、負方向の両方に広げる作用を持つ。

プラズマ生成による屈折率変化n_{plasma}は、臨界プラズマ密度ρ_cと自由電子密度ρに依存するため、

$$n_{plasma}(t) = \sqrt{1 - \frac{\rho(t)}{\rho_c}} \approx 1 - \frac{\rho(t)}{2\rho_c} \tag{4.9}$$

$$\frac{\partial n_{plasma}(t)}{\partial t} = -\frac{1}{2\rho_c}\frac{\partial \rho(t)}{\partial t} \tag{4.10}$$

(4.9)式では自由電子密度が臨界プラズマ密度に比べて十分に小さいと仮定し、近似を施した。超短パルスレーザ伝搬時には、自由電子とイオンの再結合は生じない。レーザ電離や衝突電離によって、自由電子密度は増加し続けるため、パルスレーザ通過時は常に$\delta\omega(t) > 0$である。したがって、プラズマ生成は周波数スペクトルを正方向のみに広げる作用を持つ。すなわち、波長スペクトルはブルー方向のみにシフトする。

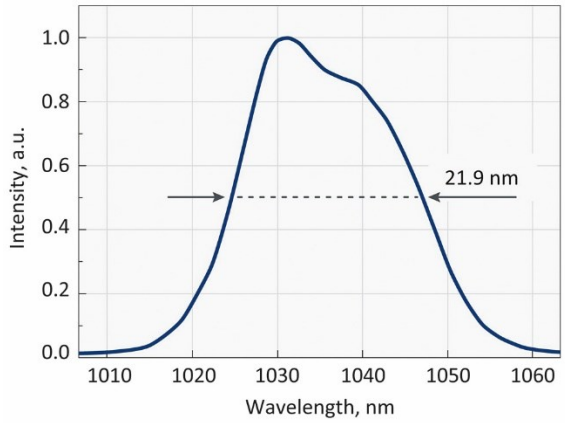
以上より、レーザ集光時の周波数スペクトル変化は大気の非線形光学現象に依存し、これらの測定は支配的な非線形光学現象の理解に貢献すると考えられる。そこで、大気中で超短パルスレーザ集光後のレーザに対して、バンドパスフィルタや分光器を用いて波長スペクトル変化を測定した。超短パルスレーザ装置は第 3 章と同じく PHAROS である。PHAROS のレーザ波長スペクトルを Fig. 4.1(a)に示す。集光条件として、パルスエネルギー0.95 mJ に統一し、パルス幅を 180 fs、300 fs、500 fs、700 fs、1 ps、2 ps、4 ps、15 ps とした。

II. バンドパスフィルタを用いたエネルギー減衰量測定

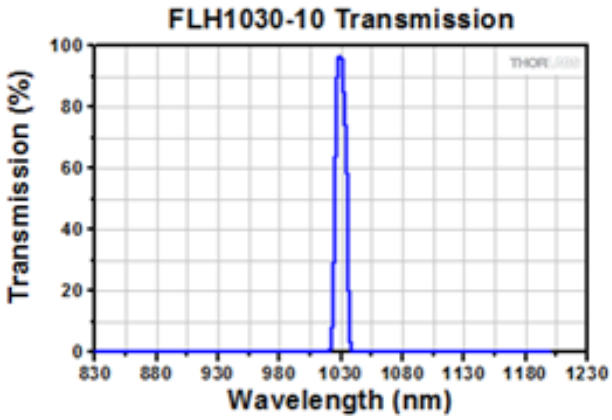
超短パルスレーザは球面平凸レンズを用いて集光し、焦点より後方にバンドパスフィルタ（BF: Bandpass Filter、THORLABS 製、FLH-1030-10）を設置し、透過したレーザはエネルギー検出器を用いてエネルギー計測を行った。用いたバンドパスフィルタの波長透過特性を Fig. 4.1(b)に示す。また、Fig. 3.1(c)に実験セットアップを示す。球面平凸レンズの焦点距離は 70 mm、150 mm を用いて、開口数の違いによる波長変化を検討した。バンドパスフィルタの耐光性から、レーザを直接入射できないため、球面平凹レンズを用いてレーザを拡大し、未集光条件とした。

III. 分光器を用いた半径方向のレーザ波長プロファイル測定

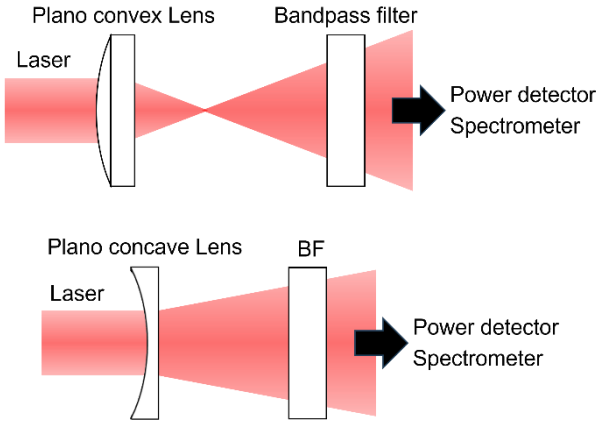
さらに詳しく波長変化を観察するために、分光器（Ocean Optics 製、NIRQuest512）を用いて波長プロファイル測定を行った。分光器はおよそ 900 nm から 1700 nm まで検出することが可能である。分光器には光ファイバーを用いて入射するが、光ファイバーでの非線形光学現象を防ぐために、レーザが十分に広がった焦点位置後方での検出を行う。レーザ全体を入射できないため、Fig. 3.1(d)に示すように、レーザが検出される領域を 12 回に分割して測定を行った。なお、後方でのレーザは広がり角が変化しているため、これらの分割位置は目安であることに留意する。



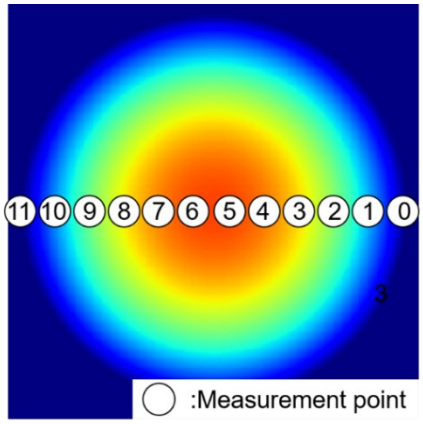
(a) Wavelength spectrum of PHAROS.



(b) Wavelength transmission property of BF.



(c) Experimental setup for laser detection.



(d) Measurement points on the irradiation area.

Fig. 4.1 Schematic diagram of experiment to measure wavelength spectrum change.

4-2-2　大気の非線形光学現象を考慮したレーザ集光特性変化の数値計算方法

大気の電離閾値を超える強度の超短パルスレーザ集光時には、大気の非線形光学現象による集光特性変化が生じる。レーザ強度分布計測に使用される CCD カメラなどは、高強度の超短パルスレーザに耐えられないため、直接的に集光時のレーザ強度やその分布を計測することは難しい。実験的に観察が困難な物理現象を理解するには、理論に基づく数値シミュレーションが有効である。

大気の非線形光学現象を考慮した非線形伝搬方程式は第 2 章で説明した。数値計算に用いた非線形シュレディンガー方程式は次の通りである。

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = \frac{i}{2k_0}\Delta_\perp \mathcal{E} - i\frac{k_0^{(2)}}{2}\frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial \tau^2} + i\frac{k_0}{n_0}n_2(1-\alpha)I\mathcal{E} + i\frac{k_0}{n_0}n_2\alpha\int_{-\infty}^{t} R_0\, exp[-\Gamma(t-\tau)]$$
$$\times sin[\omega_R(t-\tau)]\,|\mathcal{E}(\tau)|^2 d\tau\mathcal{E} - \frac{1}{2}\frac{\mathrm{W}(I)K\hbar\omega_0(\rho_{nt}-\rho)}{I}\mathcal{E} - \frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{2}(1+i\omega_0\tau_c)\rho\mathcal{E} \tag{4.11}$$

右辺において、第一項は回折、第二項は分散、第三項から第六項は非線形光学効果である。第三項は光カー効果、第四項はラマンカー効果、第五項は大気の電離によるエネルギー損失、第六項の実部はプラズマへの吸収、虚部はプラズマデフォーカシングを表す。非線形シュレディンガー方程式の数値計算には、よくスプリットステップフーリエ法（SSFM: Split Step Fourier Method）が用いられる[10]。(4.11)式は回折、分散、非線形光学効果から成り立つから、形式的に次のように表現できる。

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = \left(\hat{D} + \hat{L} + \hat{N}\right)\mathcal{E} \tag{4.12}$$

演算子$\hat{D}$は回折、$\hat{L}$は線形分散、$\hat{N}$は非線形光学効果に対応する。これは解くことができ、

$$\mathcal{E}(\xi) = \mathcal{E}_0\, exp\left\{\left(\hat{D} + \hat{L} + \hat{N}\right)\xi\right\} \tag{4.13}$$

微小距離$d\xi$だけ進んだときの解は次の通りである。

$$\mathcal{E}(\xi + d\xi) = \mathcal{E}_0\, exp\left\{\left(\hat{D} + \hat{L} + \hat{N}\right)(\xi + d\xi)\right\} = \mathcal{E}(\xi)\, exp\left\{\left(\hat{D} + \hat{L} + \hat{N}\right)d\xi\right\} \tag{4.14}$$

この方程式において、演算子を順に計算することで、光の伝搬を計算することができる。本計算では、2 次の Adams-Bashforth 法を用いて非線形性を考慮した拡張 Crank-Nicolson 法を適用し、回折と非線形光学効果を同時に計算し、分散はフーリエ変換を用いて計算した。これらの計算手法を交互に繰り返すスプリットステップ法により、光の伝搬計算を行うことができる。

I. 回折の数値計算方法：クランクニコルソン（Crank-Nicolson）法は次のような二階偏微分方程式の数値計算方法である。

$$\frac{\partial A}{\partial t} = \alpha\frac{\partial^2 A}{\partial x^2} \tag{4.15}$$

(4.15)式において、時刻t_nの 1 階微分項を前進差分、空間x_jの 2 階微分項を 2 次の中心差分を取り、

$$\frac{A_j^{n+1} - A_j^n}{\Delta t} = \alpha\frac{A_{j+1}^n - 2A_j^n + A_{j-1}^n}{\Delta x^2} \tag{4.16}$$

ただし、$j = 0,1,2,\cdots,(M-1)$の合計M個とする。(4.16)式は$j = 1,2,\cdots,(M-2)$において成り立つ。$j = 0,(M-1)$については、境界条件を与える必要がある。後の式変形を考え、次のように簡略化すると、

$$A_j^{n+1} - A_j^n = 2\beta\left(A_{j+1}^n - 2A_j^n + A_{j-1}^n\right) \tag{4.17}$$

$$\beta = \alpha\frac{\Delta t}{2\Delta x^2} \tag{4.18}$$

これは陽解法と呼ばれる。一方で、時刻t_{n+1}の 1 階微分項を後退差分、空間x_jの 2 階微分項を 2 次の中心差分を取ると、

$$\frac{A_j^{n+1}-A_j^n}{\Delta t}=\alpha\frac{A_{j+1}^{n+1}-2A_j^{n+1}+A_{j-1}^{n+1}}{\Delta x^2} \tag{4.19}$$

βを用いて簡略化すると、

$$A_j^{n+1}-A_j^n=2\beta\left(A_{j+1}^{n+1}-2A_j^{n+1}+A_{j-1}^{n+1}\right) \tag{4.20}$$

これは陰解法と呼ばれる。この方法は、時間に関しては 1 次精度、空間に関しては 2 次精度である。クランクニコルソン法は、時刻$t_{n+\frac{1}{2}}$の 1 階微分項を 2 次の中心差分、空間x_jの 2 階微分項を 2 次の中心差分を取るものであり、計算精度が時空間ともに 2 次精度である。数式としては陽解法(4.17)式と陰解法(4.19)式の和に等しい。

$$2\frac{A_j^{n+1}-A_j^n}{\Delta t}=\alpha\frac{A_{j+1}^{n}-2A_j^{n}+A_{j-1}^{n}}{\Delta x^2}+\alpha\frac{A_{j+1}^{n+1}-2A_j^{n+1}+A_{j-1}^{n+1}}{\Delta x^2} \tag{4.21}$$

βを用いて簡略化すると、

$$A_j^{n+1}-A_j^n=\beta\left(A_{j+1}^{n+1}-2A_j^{n+1}+A_{j-1}^{n+1}\right)+\beta\left(A_{j+1}^{n}-2A_j^{n}+A_{j-1}^{n}\right) \tag{4.22}$$

ここで、行列ΔJを次のように定義すると、

$$\Delta JA_j^n\equiv A_{j+1}^n-2A_j^n+A_{j-1}^n \tag{4.23}$$

$$A_j^{n+1}-A_j^n=\beta\left(\Delta JA_j^{n+1}+\Delta JA_j^n\right) \tag{4.24}$$

行列ΔJを行列形式で記述すると、

$$\Delta JA_j^n=\begin{bmatrix}-2 & 1 & 0 & \cdots & & & & & & \cdots & 0\\ 1 & -2 & 1 & 0 & \cdots & & & & & & \vdots\\ 0 & 1 & -2 & 1 & 0 & \cdots & & & & & \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & & & & & \\ & & & & & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots\\ & & & & & \cdots & 0 & 1 & -2 & 1 & 0\\ \vdots & & & & & & \cdots & 0 & 1 & -2 & 1\\ 0 & \cdots & & & & & & \cdots & 0 & 1 & -2\end{bmatrix}\begin{bmatrix}A_0^{n+1}\\ A_1^{n+1}\\ A_2^{n+1}\\ \vdots\\ \vdots\\ A_{M-3}^{n+1}\\ A_{M-2}^{n+1}\\ A_{M-1}^{n+1}\end{bmatrix} \tag{4.25}$$

(4.24)式を時刻ごとに整理すると、

$$(1-\beta\Delta J)A_j^{n+1}=(1+\beta\Delta J)A_j^n \tag{4.26}$$

(4.26)式はM本の連立方程式であり、時刻t_nの状態A_j^nから時刻t_{n+1}のA_j^{n+1}を求められる。これを大きな行列L_-、L_+を用いて表すと、

$$L_- A_j^{n+1} = L_+ A_j^n \tag{4.27}$$

$$L_- = 1 - \beta \Delta J \tag{4.28}$$

$$L_+ = 1 + \beta \Delta J \tag{4.29}$$

$j = 0, (M-1)$に対応する 1 行目、M行目のベクトルについては、境界条件に応じた値を与える必要があることを考慮し、行列形式で表示すると、

$$L_- A_j^{n+1} = \begin{bmatrix} c_{0,-} & c_{1,-} & c_{2,-} & \cdots & & & & \cdots & c_{M-3,-} & c_{M-2,-} & c_{M-1,-} \\ -\beta & 1+2\beta & -\beta & 0 & \cdots & & & & & & 0 \\ 0 & -\beta & 1+2\beta & -\beta & 0 & \cdots & & & & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & & & & & \\ & & & & & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & & & & & \cdots & 0 & -\beta & 1+2\beta & -\beta & 0 \\ 0 & & & & & & \cdots & 0 & -\beta & 1+2\beta & -\beta \\ d_{0,-} & d_{1,-} & d_{2,-} & \cdots & & & & \cdots & d_{M-3,-} & d_{M-2,-} & d_{M-1,-} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_0^{n+1} \\ A_1^{n+1} \\ A_2^{n+1} \\ \vdots \\ \vdots \\ A_{M-3}^{n+1} \\ A_{M-2}^{n+1} \\ A_{M-1}^{n+1} \end{bmatrix} \tag{4.30}$$

$$L_+ A_j^n = \begin{bmatrix} c_{0,+} & c_{1,+} & c_{2,+} & \cdots & & & & \cdots & c_{M-3,+} & c_{M-2,+} & c_{M-1,+} \\ \beta & 1-2\beta & \beta & 0 & \cdots & & & & & & 0 \\ 0 & \beta & 1-2\beta & \beta & 0 & \cdots & & & & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & & & & & \\ & & & & & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & & & & & \cdots & 0 & \beta & 1-2\beta & \beta & 0 \\ 0 & & & & & & \cdots & 0 & \beta & 1-2\beta & \beta \\ d_{0,+} & d_{1,+} & d_{2,+} & \cdots & & & & \cdots & d_{M-3,+} & d_{M-2,+} & d_{M-1,+} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_0^n \\ A_1^n \\ A_2^n \\ \vdots \\ \vdots \\ A_{M-3}^n \\ A_{M-2}^n \\ A_{M-1}^n \end{bmatrix} \tag{4.31}$$

例えば、x_0において$A_0^{n+1} = A_0^n$、x_{M-1}において$A_{M-1}^{n+1} = 0$という境界条件ならば、$c_{0,+} = 1,\ c_{0,-} = 1, d_{M-1,+} = 1$とし、その他の$c, d$をゼロとすれば常に境界条件を満たすように計算できる。(4.27)式において、L_-の逆行列L_-^{-1}を両辺に左側から積すれば、右辺の$L_-^{-1} L_- = 1$であるため、

$$A_j^{n+1} = L_-^{-1} L_+ A_j^n \tag{4.32}$$

このように、時刻t_nの状態A_j^nが求まれば、次の時刻t_{n+1}の状態A_j^{n+1}が求められる。初期条件A_j^0と境界条件が与えられれば、その後の変化を計算できる。以上がクランクニコルソン法の計算方法である。

非線形シュレディンガー方程式(4.11)式において、回折項の計算はクランクニコルソン法を用いて行う。回折項のみを取り出し、極座標表示すると、以下のように表現できる。

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = \frac{i}{2k_0}\left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\right)\mathcal{E} \tag{4.33}$$

ただし、$r=0$においては、次のように与えられる。

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi}=\frac{i}{2k_0}\left(\frac{\partial^2}{\partial r^2}+\frac{\partial^2}{\partial r^2}\right)\mathcal{E} \tag{4.34}$$

これはデカルト座標系において、$x=y=r$と場合と等価である。(4.33)式において、rの二階微分項と一階微分項の中心差分を取り、$r=j\Delta r$であることを用いると、陽解法では、

$$\frac{\mathcal{E}_j^{n+1}-\mathcal{E}_j^n}{\Delta\xi}=\frac{i}{2k_0}\left(\frac{\mathcal{E}_{j+1}^n-2\mathcal{E}_j^n+\mathcal{E}_{j-1}^n}{\Delta r^2}+\frac{1}{j\Delta r}\frac{\mathcal{E}_{j+1}^n-\mathcal{E}_{j-1}^n}{2\Delta r}\right) \tag{4.35}$$

(4.17)式と同様に、次のように整理すると、

$$\mathcal{E}_j^{n+1}-\mathcal{E}_j^n=2i\delta\left\{\left(1+\frac{1}{2j}\right)\mathcal{E}_{j+1}^n-2\mathcal{E}_j^n+\left(1-\frac{1}{2j}\right)\mathcal{E}_{j-1}^n\right\} \tag{4.36}$$

$$\delta=\frac{1}{4k_0}\frac{\Delta\xi}{\Delta r^2} \tag{4.37}$$

(4.23)式のように、行列ΔJを次のように定義すると、

$$\Delta J\mathcal{E}_j^n\equiv\left(1+\frac{1}{2j}\right)\mathcal{E}_{j+1}^n-2\mathcal{E}_j^n+\left(1-\frac{1}{2j}\right)\mathcal{E}_{j-1}^n \tag{4.38}$$

$$\mathcal{E}_j^{n+1}-\mathcal{E}_j^n=2i\delta\Delta J\mathcal{E}_j^n \tag{4.39}$$

行列ΔJを行列形式で記述すると、

$$\Delta J\mathcal{E}_j^n=\begin{bmatrix}-2 & v_0 & 0 & \cdots & & & & & & \cdots & 0\\ u_1 & -2 & v_1 & 0 & \cdots & & & & & & \vdots\\ 0 & u_2 & -2 & v_2 & 0 & \cdots & & & & & \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & & & & & \\ & & & & & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots\\ & & & & & \cdots & 0 & u_{M-3} & -2 & v_{M-3} & 0\\ \vdots & & & & & & \cdots & 0 & u_{M-2} & -2 & v_{M-2}\\ 0 & \cdots & & & & & & \cdots & 0 & u_{M-1} & -2\end{bmatrix}\begin{bmatrix}\mathcal{E}_0^{n+1}\\ \mathcal{E}_1^{n+1}\\ \mathcal{E}_2^{n+1}\\ \vdots\\ \vdots\\ \mathcal{E}_{M-3}^{n+1}\\ \mathcal{E}_{M-2}^{n+1}\\ \mathcal{E}_{M-1}^{n+1}\end{bmatrix} \tag{4.40}$$

$$u_j\equiv 1-\frac{1}{2j} \tag{4.41}$$

$$v_j\equiv 1+\frac{1}{2j} \tag{4.42}$$

極座標表示により、u_j, v_jはjに依存する値となる。陰解法も同様に整理して、

$$\mathcal{E}_j^{n+1}-\mathcal{E}_j^n=2i\delta\Delta J\mathcal{E}_j^{n+1} \tag{4.43}$$

(4.39)式と(4.43)式の和を取り 2 で割ったクランクニコルソン法は

$$\mathcal{E}_j^{n+1} - \mathcal{E}_j^n = i\delta\left(\Delta J \mathcal{E}_j^n + \Delta J \mathcal{E}_j^{n+1}\right) \tag{4.44}$$

(4.44)式を時刻ごとに整理すると、

$$(1 - i\delta\Delta J)\mathcal{E}_j^{n+1} = (1 + i\delta\Delta J)\mathcal{E}_j^n \tag{4.45}$$

これを大きな行列L_-、L_+を用いて表すと、

$$L_- \mathcal{E}_j^{n+1} = L_+ \mathcal{E}_j^n \tag{4.46}$$

$$L_- = 1 - i\delta\Delta J \tag{4.47}$$

$$L_+ = 1 + i\delta\Delta J \tag{4.48}$$

$j = 0, (M-1)$に対応する 1 行目、M行目のベクトルについては、境界条件に応じた値を与える必要があることを考慮し、行列形式で表示すると、

$$L_- = \begin{bmatrix} c_{0,-} & c_{1,-} & c_{2,-} & \cdots & & & \cdots & c_{M-3,-} & c_{M-2,-} & c_{M-1,-} \\ -i\delta u_1 & 1+2i\delta & -i\delta v_1 & 0 & \cdots & & & & & 0 \\ 0 & -i\delta u_2 & 1+2i\delta & -i\delta v_2 & 0 & \cdots & & & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & & & & \\ & & & & & & & & & \\ & & & & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & & & & & 0 & -i\delta u_{M-3} & 1+2i\delta & -i\delta v_{M-3} & 0 \\ 0 & & & & & \cdots & 0 & -i\delta u_{M-2} & 1+2i\delta & -i\delta v_{M-2} \\ d_{0,-} & d_{1,-} & d_{2,-} & \cdots & & & \cdots & d_{M-3,-} & d_{M-2,-} & d_{M-1,-} \end{bmatrix} \tag{4.49}$$

$$L_+ = \begin{bmatrix} c_{0,+} & c_{1,+} & c_{2,+} & \cdots & & & \cdots & c_{M-3,+} & c_{M-2,+} & c_{M-1,+} \\ i\delta u_1 & 1-2i\delta & i\delta v_1 & 0 & \cdots & & & & & 0 \\ 0 & i\delta u_2 & 1-2i\delta & i\delta v_2 & 0 & \cdots & & & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & & & & \\ & & & & & & & & & \\ & & & & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & & & & & \cdots\ 0 & i\delta u_{M-3} & 1-2i\delta & i\delta v_{M-3} & 0 \\ 0 & & & & & \cdots & 0 & i\delta u_{M-2} & 1-2i\delta & i\delta v_{M-2} \\ d_{0,+} & d_{1,+} & d_{2,+} & \cdots & & & \cdots & d_{M-3,+} & d_{M-2,+} & d_{M-1,+} \end{bmatrix} \tag{4.50}$$

レーザ伝搬計算における境界条件は、$r = 0$、$r = (M-1)\Delta r$において与えられる。$r = (M-1)\Delta r$の境界条件は、半径方向を十分に広くとり、レーザ電場をゼロとすればよい。$d_{M-1,-} = 1$、その他のdはゼロとすれば、常に$\mathcal{E}_{M-1}^{n+1} = 0$が成り立つ。$r = 0$の境界条件はレーザ電場の傾きがゼロである。仮想的に$\mathcal{E}_{-1}^n$を用意し、$r = 0$での中心差分を取ると、

$$\frac{\partial \mathcal{E}_0^n}{\partial r} = \frac{\mathcal{E}_{+1}^n - \mathcal{E}_{-1}^n}{2\Delta r} = 0 \tag{4.51}$$

$r = 0$で満たす偏微分方程式は(4.34)式であり、これをクランクニコルソン法で表記すると、

$$2\frac{\mathcal{E}_j^{n+1}-\mathcal{E}_j^n}{\Delta\xi}=\frac{i}{2k_0}\left(2\frac{\mathcal{E}_{j+1}^{n+1}-2\mathcal{E}_j^{n+1}+\mathcal{E}_{j-1}^{n+1}}{\Delta r^2}+2\frac{\mathcal{E}_{j+1}^{n}-2\mathcal{E}_j^{n}+\mathcal{E}_{j-1}^{n}}{\Delta r^2}\right) \tag{4.52}$$

(4.37)式を用いて、時刻ごとに整理すると、

$$-2i\delta\mathcal{E}_{j+1}^{n+1}+(1+4i\delta)\mathcal{E}_j^{n+1}-2i\delta\mathcal{E}_{j-1}^{n+1}=2i\delta\mathcal{E}_{j+1}^{n}+(1-4i\delta)\mathcal{E}_j^{n}+2i\delta\mathcal{E}_{j-1}^{n} \tag{4.53}$$

これは$j=0$のみが満たす方程式であり、

$$-2i\delta\mathcal{E}_{1}^{n+1}+(1+4i\delta)\mathcal{E}_0^{n+1}-2i\delta\mathcal{E}_{-1}^{n+1}=2i\delta\mathcal{E}_{1}^{n}+(1-4i\delta)\mathcal{E}_0^{n}+2i\delta\mathcal{E}_{-1}^{n} \tag{4.54}$$

この方程式のすべてのnにおいて、境界条件(4.51)式を満たせばよい。初期条件のレーザは軸対称であるため、$n=0$において境界条件を満たす。数学的帰納法により、nにおいて境界条件を満たすとき、$n+1$においても境界条件が満たされればよい。nにおいて境界条件を満たすとき、

$$\mathcal{E}_{+1}^{n}=\mathcal{E}_{-1}^{n} \tag{4.55}$$

これを(4.54)式に代入すると、

$$-2i\delta\mathcal{E}_{1}^{n+1}+(1+4i\delta)\mathcal{E}_0^{n+1}-2i\delta\mathcal{E}_{-1}^{n+1}=4i\delta\mathcal{E}_{1}^{n}+(1-4i\delta)\mathcal{E}_0^{n} \tag{4.56}$$

(4.56)式が、$\mathcal{E}_{+1}^{n+1}=\mathcal{E}_{-1}^{n+1}$となる恒等式であればよい。そのための条件は、

$$(1+4i\delta)\mathcal{E}_0^{n+1}=4i\delta\mathcal{E}_{1}^{n+1}+4i\delta\mathcal{E}_{1}^{n}+(1-4i\delta)\mathcal{E}_0^{n} \tag{4.57}$$

である。これを満たすように(4.46)式の係数を与えればよい。(4.46)式の$r=0$における方程式は、

$$c_{0,-}\mathcal{E}_0^{n+1}+c_{1,-}\mathcal{E}_1^{n+1}+\cdots+c_{M-1,-}\mathcal{E}_{M-1}^{n+1}=c_{0,+}\mathcal{E}_0^{n}+c_{1,+}\mathcal{E}_1^{n}+\cdots+c_{M-1,+}\mathcal{E}_{M-1}^{n} \tag{4.58}$$

$\mathcal{E}_0$,$\mathcal{E}_1$ 以外の係数をゼロとし、

$$c_{0,-}\mathcal{E}_0^{n+1}+c_{1,-}\mathcal{E}_1^{n+1}=c_{0,+}\mathcal{E}_0^{n}+c_{1,+}\mathcal{E}_1^{n} \tag{4.59}$$

これが(4.57)式に一致すればよいため、

$$c_{0,-}=1+4i\delta,\qquad c_{1,-}=-4i\delta \tag{4.60}$$

$$c_{0,+}=1-4i\delta,\qquad c_{1,+}=4i\delta \tag{4.61}$$

以上より、境界条件を満たした行列L_-、L_+は以下の通りである。

$$L_- = \begin{bmatrix} 1+4i\delta & -4i\delta & 0 & \cdots & & & & & \cdots & 0 \\ -i\delta u_1 & 1+2i\delta & -i\delta v_1 & 0 & \cdots & & & & & \vdots \\ 0 & -i\delta u_2 & 1+2i\delta & -i\delta v_2 & 0 & \cdots & & & & \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & & & & \\ & & & & & & & & & \\ & & & & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ & & & & & 0 & -i\delta u_{M-3} & 1+2i\delta & -i\delta v_{M-3} & 0 \\ \vdots & & & & & \cdots & 0 & -i\delta u_{M-2} & 1+2i\delta & -i\delta v_{M-2} \\ 0 & \cdots & & & & & & \cdots & 0 & 1 \end{bmatrix} \tag{4.62}$$

$$L_+ = \begin{bmatrix} 1-4i\delta & 4i\delta & 0 & \cdots & & & & & \cdots & 0 \\ i\delta u_1 & 1-2i\delta & i\delta v_1 & 0 & \cdots & & & & & \vdots \\ 0 & i\delta u_2 & 1-2i\delta & i\delta v_2 & 0 & \cdots & & & & \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & & & & \\ & & & & & & & & & \\ & & & & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ & & & & & \cdots\ 0 & i\delta u_{M-3} & 1-2i\delta & i\delta v_{M-3} & 0 \\ \vdots & & & & & \cdots & 0 & i\delta u_{M-2} & 1-2i\delta & i\delta v_{M-2} \\ 0 & \cdots & & & & & & \cdots & 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{4.63}$$

(4.46)式において、(4.32)式と同様にL_-の逆行列L_-^{-1}を両辺に左側から積すれば、

$$\mathcal{E}_j^{n+1} = L_-^{-1} L_+ \mathcal{E}_j^n \tag{4.64}$$

レーザの初期条件$\mathcal{E}_j^0$を与えることにより、回折を考慮した伝搬計算を行うことができる。

II. 非線形項を考慮した回折の数値計算方法：2 次の Adams-Bashforth 法を用いた拡張 Crank-Nicolson 法は次のような非線形項を含む二階偏微分方程式の数値計算方法である。

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = \frac{i}{2k_0}\left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\right)\mathcal{E} + N(\mathcal{E}) \tag{4.65}$$

非線形項は考慮する項に依存するが、本計算では次の通りである。

$$\begin{aligned} N(\mathcal{E}) = {} & i\frac{k_0}{n_0} n_2 (1-\alpha) I\mathcal{E} + i\frac{k_0}{n_0} n_2 \alpha \int_{-\infty}^{t} R_0\, exp[-\Gamma(t-\tau)]\, sin[\omega_R(t-\tau)]\, |\mathcal{E}(\tau)|^2 d\tau \mathcal{E} \\ & -\frac{1}{2}\frac{W(I) K\hbar\omega_0(\rho_{nt}-\rho)}{I}\mathcal{E} - \frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{2}(1+i\omega_0\tau_c)\rho\mathcal{E} \end{aligned} \tag{4.66}$$

2 次の Adams-Bashforth 法は、現在時刻と 1 つ前の時刻における非線形項を用いることで、クランクニコルソン法の二次の計算精度を損なわずに非線形項の数値計算を行うことができる。

$$\mathcal{E}_j^{n+1} - \mathcal{E}_j^n = i\delta\left(\Delta J \mathcal{E}_j^n + \Delta J \mathcal{E}_j^{n+1}\right) + \left(\frac{3}{2}N_j^n + \frac{1}{2}N_j^{n-1}\right) \tag{4.67}$$

$$N_j^n \equiv N\left(\mathcal{E}_j^n\right)\Delta\xi \tag{4.68}$$

回折項に加えて非線形項も陰解法で取り扱う場合、計算コストは非常に高くなるため、陽的な方法で取り扱う。そのため、計算刻みを細かく設定する必要がある。回折項についてはクランクニコル

ソン法と同じように変形できるため、

$$L_{-}\mathcal{E}_j^{n+1} = L_{+}\mathcal{E}_j^{n} + \left(\frac{3}{2}N_j^{n} + \frac{1}{2}N_j^{n-1}\right) \tag{4.69}$$

(4.64)式と同様にL_{-}の逆行列L_{-}^{-1}を両辺に左側から積すれば、

$$\mathcal{E}_j^{n+1} = L_{-}^{-1}\left[L_{+}\mathcal{E}_j^{n} + \frac{3}{2}N_j^{n} + \frac{1}{2}N_j^{n-1}\right] \tag{4.70}$$

これにより、回折と非線形光学効果を考慮した伝搬計算を行うことができる。

III. 分散の数値計算方法：分散はフーリエ変換を用いて計算することができる。(4.11)式から分散項を取り出すと、

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = -i\frac{k_0^{(2)}}{2}\frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial \tau^2} \tag{4.71}$$

第 2 章のフーリエ変換の定義を用いて両辺をフーリエ変換すると、

$$\frac{\partial \hat{\mathcal{E}}}{\partial \xi} = i\frac{k_0^{(2)}\omega^2}{2}\hat{\mathcal{E}} \tag{4.72}$$

これは解を求めることができ、

$$\hat{\mathcal{E}}(\xi) = \widehat{\mathcal{E}_0}\, exp\left(i\frac{k_0^{(2)}\omega^2}{2}\xi\right) \tag{4.73}$$

微小距離$d\xi$だけ進んだときの解は、

$$\hat{\mathcal{E}}(\xi + d\xi) = \widehat{\mathcal{E}_0} exp\left\{i\frac{k_0^{(2)}\omega^2}{2}(\xi + d\xi)\right\} = \hat{\mathcal{E}}(\xi)\, exp\left(i\frac{k_0^{(2)}\omega^2}{2}d\xi\right) \tag{4.74}$$

したがって、伝搬時の分散は周波数領域にて、$exp\left(i\frac{k_0^{(2)}\omega^2}{2}d\xi\right)$を積した後、逆フーリエ変換により時間軸に戻すことで計算できる。以上より、回折、分散、非線形光学効果の計算を行うことができる。ただし、非線形光学効果は別途数値計算が必要な項がある。それらについて以下に説明する。

IV. 非線形光学効果の数値計算方法：非線形光学効果は(4.66)式で示されるように、光カー効果、ラマンカー効果、大気の電離、プラズマデフォーカシングから成り立つ。時間に依存する変数を含む項は、非線形伝搬計算と連立して解く必要がある。時間に依存する項は、ラマンカー効果、電子密度であり、それらの数値計算方法について示す。

ラマンカー効果に関する非線形項は次の通りである。

$$N_{Raman}(\mathcal{E}) = i\frac{k_0}{n_0}n_2\alpha Q(t)\mathcal{E} \tag{4.75}$$

$$Q(t) = \int_{-\infty}^{t} R_0\, exp[-\Gamma(t-\tau)]\, sin[\omega_R(t-\tau)]\, |\mathcal{E}(\tau)|^2 d\tau \tag{4.76}$$

三角関数を複素表示することにより、計算を簡略化できる。

$$Q_i(t) = \int_{-\infty}^{t} R_0\, exp[-\Gamma(t-\tau)]\, exp[i\omega_R(t-\tau)]\, |\mathcal{E}(\tau)|^2 d\tau \tag{4.77}$$

ただし、$Q_i(t)$の虚部が$Q(t)$である。τに依存しない項を定積分の外に出し、

$$Q_i(t) = R_0\, exp[(-\Gamma + i\omega_R)t] \int_{-\infty}^{t} exp[(\Gamma - i\omega_R)\tau]\, |\mathcal{E}(\tau)|^2 d\tau \tag{4.78}$$

どの時間においても成り立つから、微小時間Δt経過後には、

$$Q_i(t+\Delta t) = R_0\, exp[(-\Gamma + i\omega_R)(t+\Delta t)] \int_{-\infty}^{t+\Delta t} exp[(\Gamma - i\omega_R)\tau]\, |\mathcal{E}(\tau)|^2 d\tau \tag{4.79}$$

時刻tを境に積分範囲を分割すると、

$$\begin{aligned} Q_i(t+\Delta t) &= R_0\, exp[(-\Gamma + i\omega_R)t]\, exp[(-\Gamma + i\omega_R)\Delta t] \\ &\times \left\{ \int_{-\infty}^{t} exp[(\Gamma - i\omega_R)\tau]\, |\mathcal{E}(\tau)|^2 d\tau + \int_{t}^{t+\Delta t} exp[(\Gamma - i\omega_R)\tau]\, |\mathcal{E}(\tau)|^2 d\tau \right\} \end{aligned} \tag{4.80}$$

これは$Q_i(t)$を用いて表せるから、

$$\begin{aligned} Q_i(t+\Delta t) &= exp[(-\Gamma + i\omega_R)\Delta t]\, Q_i(t) \\ &+ R_0\, exp[(-\Gamma + i\omega_R)(t+\Delta t)] \int_{t}^{t+\Delta t} exp[(\Gamma - i\omega_R)\tau]\, |\mathcal{E}(\tau)|^2 d\tau \end{aligned} \tag{4.81}$$

右辺第二項の積分に台形積分（trapezoidal evaluation）を適用し、

$$\begin{aligned} &\int_{t}^{t+\Delta t} exp[(\Gamma - i\omega_R)\tau]\, |\mathcal{E}(\tau)|^2 d\tau \approx \{(t+\Delta t) - t\} \\ &\times \{exp[(\Gamma - i\omega_R)(t+\Delta t)]\, |\mathcal{E}(t+\Delta t)|^2 + exp[(\Gamma - i\omega_R)t]\, |\mathcal{E}(t)|^2\} \times \frac{1}{2} \end{aligned} \tag{4.82}$$

これを(4.81)式に代入すると、係数が打ち消されることに注意して、

$$Q_i(t+\Delta t) = exp[(-\Gamma + i\omega_R)\Delta t]\, Q_i(t) + \frac{R_0 \Delta t}{2} \{|\mathcal{E}(t+\Delta t)|^2 + exp[(-\Gamma + i\omega_R)\Delta t]\, |\mathcal{E}(t)|^2\} \tag{4.83}$$

$Q_i(t)$の初期条件はゼロであるため、レーザ伝搬と合わせて$Q_i(t)$の時間発展を数値計算できる。また、ラマンカー効果は空間ごとに異なる値を持つため、r, zの各位置で計算する必要がある。

電子密度の関与する非線形項は次の通りである。

$$N_{ionize}(\mathcal{E}) = -\frac{1}{2} \frac{W(I) K \hbar \omega_0 (\rho_{nt} - \rho)}{I} \mathcal{E} \tag{4.84}$$

$$N_{plasma} = -\frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{2} (1 + i\omega_0 \tau_c) \rho \mathcal{E} \tag{4.85}$$

どちらも電子密度が積されるだけであるから、電子密度ρの時間発展を求めればよい。第 2 章で示した一般的な電子密度のレート方程式において、再結合を無視すると、

$$\frac{d\rho}{dt} = W(I)(\rho_{nt} - \rho) + \frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{U_p} \rho I \tag{4.86}$$

左辺を離散化することにより、

$$\rho(t+\Delta t)=\rho(t)+\Delta t W(I)\{\rho_{nt}-\rho(t)\}+\Delta t\frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{U_p}\rho(t)I \tag{4.87}$$

大気中においては、酸素分子と窒素分子のそれぞれについてこれを解けばよい。また、衝突電離を電子温度依存で計算する場合、電子温度ごとの電子密度が次のように表される。

$$\frac{d\rho(\epsilon)}{dt}=\sum_m[-\nu_m(\epsilon)\rho(\epsilon)+\nu_m(\epsilon+U_m)\rho(\epsilon+U_m)]+\delta(\epsilon-\epsilon_1)\int_0^\infty\nu_m(\epsilon')\rho(\epsilon')d\epsilon'+\delta(\epsilon)W(I)P_m \tag{4.88}$$

これを時間で離散化した式は次のようになる。

$$\begin{aligned}\rho(\epsilon,t+\Delta t)=\rho(\epsilon,t)+\Delta t\sum_m[-\nu_m(\epsilon)\rho(\epsilon,t)+\nu_m(\epsilon+U_m)\rho(\epsilon+U_m,t)]\\+\Delta t\delta(\epsilon-\epsilon_1)\int_0^\infty\nu_m(\epsilon')\rho(\epsilon',t)d\epsilon'+\Delta t\delta(\epsilon)W(I)P_m(t)\end{aligned} \tag{4.89}$$

右辺に含まれる積分は、$\Delta\epsilon$で離散化されたエネルギーϵすべてについて計算すればよい。また、電子エネルギーϵの増加は次の式で表される。

$$\frac{d\epsilon}{dt}=\frac{1}{2}\frac{e^2E^2}{m}\frac{\nu_{cm}}{\nu_{cm}^2+\omega_0^2} \tag{4.90}$$

これを時間で離散化すると、

$$\epsilon(t+\Delta t)=\epsilon(t)+\Delta t\frac{1}{2}\frac{e^2E^2}{m}\frac{\nu_{cm}}{\nu_{cm}^2+\omega_0^2} \tag{4.91}$$

これにより、エネルギー$\epsilon(t)$は新たに$\epsilon(t+\Delta t)$のエネルギーを持つ。電子エネルギーは$\Delta\epsilon$で離散化するため、$\epsilon(t+\Delta t)$をϵと$\epsilon+\Delta\epsilon$のエネルギーを持つ電子に再分配する。電子エネルギーの再分配はFig. 4.2 に示すような区間のみを考え、エネルギー増加後のϵ^*位置で線形に分配すると、

$$\rho^{k+1}(\epsilon_n)=\left(\frac{\Delta\epsilon-d\epsilon_n^*}{\Delta\epsilon}\right)\rho^{k*}(\epsilon_n^*) \tag{4.92}$$

$$\rho^{k+1}(\epsilon_{n+1})=\frac{d\epsilon_n^*}{\Delta\epsilon}\rho^{k*}(\epsilon_n^*) \tag{4.93}$$

この分配が全てのϵ_nで行われるため、

$$\rho^{k+1}(\epsilon_n)=\frac{d\epsilon_n^*}{\Delta\epsilon}\rho^{k*}(\epsilon_{n-1}^*)+\left(\frac{\Delta\epsilon-d\epsilon_n^*}{\Delta\epsilon}\right)\rho^{k*}(\epsilon_n^*) \tag{4.94}$$

内分の計算を行うため、$\epsilon(t+\Delta t)-\epsilon(t)=d\epsilon^*<\Delta\epsilon$となるように十分小さな時間刻み$\Delta t$を設定しておく必要がある。これらより、電子密度のレート方程式は計算することができる。

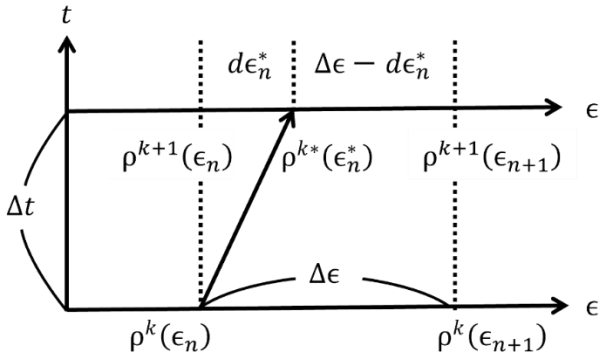


Fig. 4.2 Calculation of the temporal advance of the electron energy density distribution.

以上より、回折項、分散項、非線形項の数値計算を行うことができ、レーザの非線形伝搬計算を行うことができる。Fig. 4.3 に計算フローチャートを示す。これらの数値計算プログラムは MATLAB でコード化した。

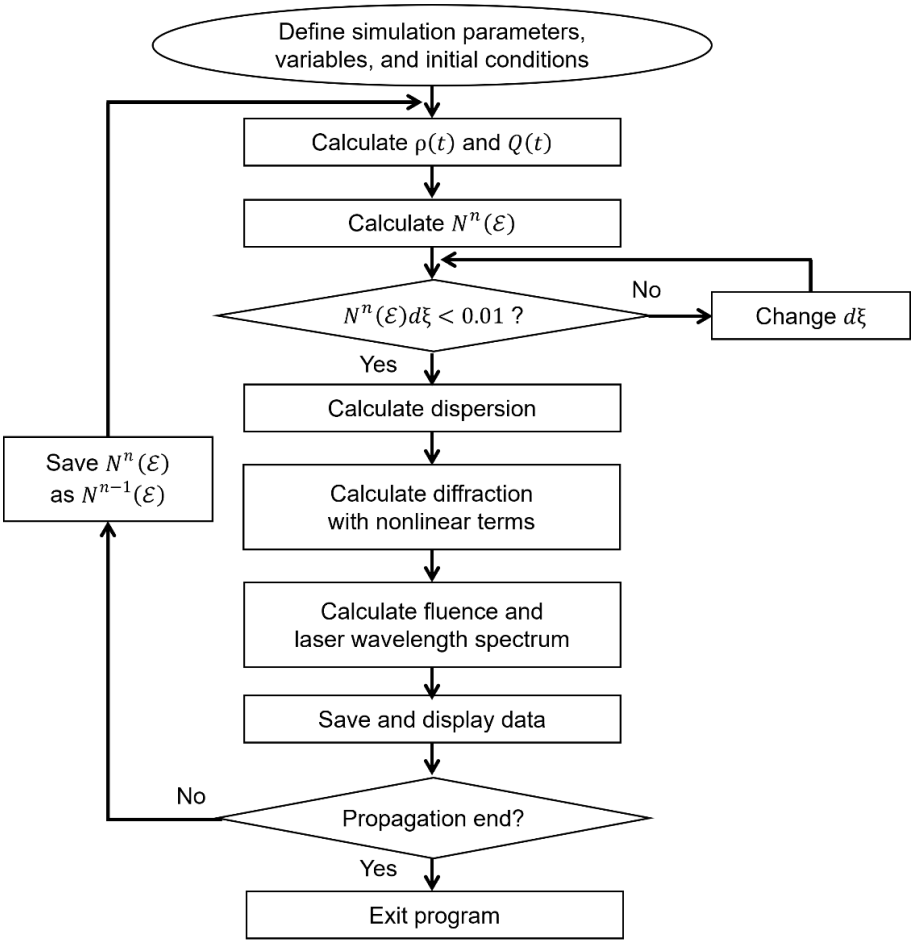


Fig. 4.3 Flowchart of nonlinear propagation simulation program on solving NLSE by the split-step method.

最後に、本計算で用いた物性値を Table 4.1 に、計算範囲や計算刻みなどの計算条件を Table 4.2 に示す。非線形光学効果の物理的な特性は、波長 800 nm において広く研究されてきた。一方で、我々の知る限り、波長 1028 nm における物性値を提供する文献は限られている。大気の光カー効果については、800 nm と 1250 nm のカー指数が誤差範囲内であることから[29]、波長 800 nm におけるカ

ー指数およびラマンカー指数を採用した[16,30]。また、PPT モデルによる電離率計算では、波長に依存せずに電離率を計算することが可能であるが、波長 800 nm においては、酸素分子と窒素分子のそれぞれに有効核電荷を与えることで精度良く電離率を計算可能なことが確認されている[31]。波長 1028 nm に対する電離率の実験結果は提供されていないため、波長 800 nm に対する有効核電荷を用いて、波長 1028 nm の電離率を算出した。電子の衝突までにかかる平均自由時間は、レーザフィラメンテーション分野でよく扱われる 350 fs とした。この値は数十 fs から数ピコ秒に変動させても計算結果には大きな影響を及ぼさないことを確認した。

レーザ伝搬計算は、パルス中心が焦点位置から上流 5 mm 位置で開始した。上流 5 mm まではレーザ強度が十分に低く、線形伝搬領域であると仮定した。半径方向については、上流 5 mm 位置でのビーム径の 3 倍以上を確保し、時間方向には±方向においてパルス幅の 3 倍から 6 倍の範囲とした。各計算刻みは、線形伝搬を正しく計算できるように十分に小さく設定した。伝搬計算刻みは非線形項による変化を Fig. 4.3 で示される条件を満たすように調整し、非線形項の影響が小さい場合には最大 8 倍の計算刻みを採用し、計算コストを抑えた。これらの条件での数値計算はシングル CPU（Corei9-11900K, Intel Corp.）を使用して行われ、約 120 時間を要する。衝突電離計算を無視した場合、計算時間は 10 時間以内に終了する。

Table 4.1 The parameter used in this calculation.

Parameter	Value
n_0: linear refraction index	1.000283
$k_0^{(2)}$: group velocity dispersion	0.2 fs^2/cm [32]
n_2: nonlinear index coefficient	2.9×10^{-19} cm^2/W [30]
α: factor for the proportion of Kerr and Raman-Kerr effects	0.5
Γ^{-1}: molecular response time	70 fs [16]
ω_R: molecular rotational frequency	16 THz [16]
τ_c: electron collision time	350 fs [16]
σ_{IB}: cross section for inverse Bremsstrahlung	9.0×10^{-20} cm^2

Table 4.2 Computational dimensions for each pulse width in the numerical simulations.

Pulse width	r	τ	ξ	dr	$d\tau$	$d\xi$
180 fs	[0, 420] μm	[-1.08, 1.08] ps	[-5, 3] mm	0.7 μm	2.1 fs	0.6 μm
1 ps	[0, 385] μm	[-6, 6] ps	[-5, 4] mm	0.7 μm	5.9 fs	1.8 μm
4 ps	[0, 412.5] μm	[-12,12] ps	[-5, 4] mm	1.5 μm	5.9 fs	1.8 μm

4-3 実験結果

4-3-1 バンドパスフィルタを用いたエネルギー減衰計測結果

レンズへの入射前のパルスエネルギーは 0.95 mJ で統一した。球面平凹レンズや平凸レンズを透過することで、パルスエネルギーは数%程度損失する。バンドパスフィルタ透過後のパルスエネルギー測定結果を Fig. 4.4 に示す。焦点距離 100 mm の凹レンズによる未集光条件でも、透過エネル

ギーは約 0.6 mJ に減衰する。パルス幅が短い条件で、エネルギー減衰がやや大きい傾向が見られる。大気中でのレーザ集光条件において、焦点距離 150 mm および 70 mm のレンズを用いた場合、パルス幅が短い条件ほど透過エネルギーの損失が顕著である。これは大気中での集光によって、レーザ波長変化が生じたことを示唆する。また、集光の強い焦点距離 70 mm の条件では、その変化量が特に大きいことが観察され、集光の強さが非線形光学効果の影響を強めることが示唆される。以上より、パルス幅が短く、レーザ強度が高い条件では、大気の非線形光学現象の影響を無視できないことが示唆された。

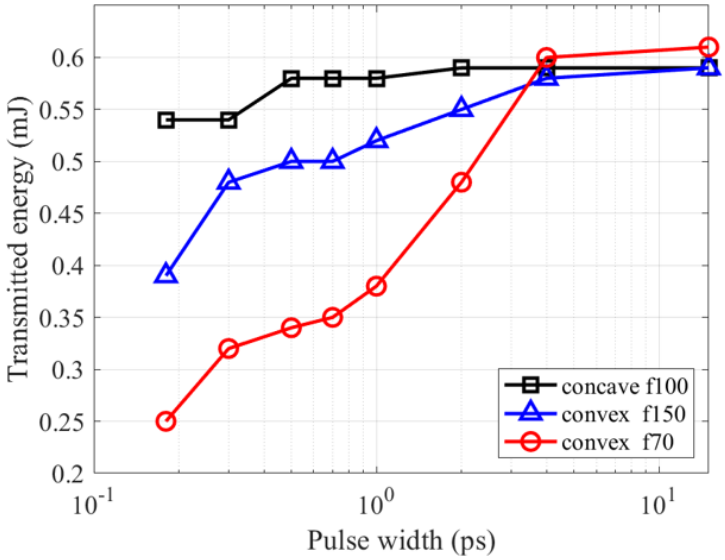


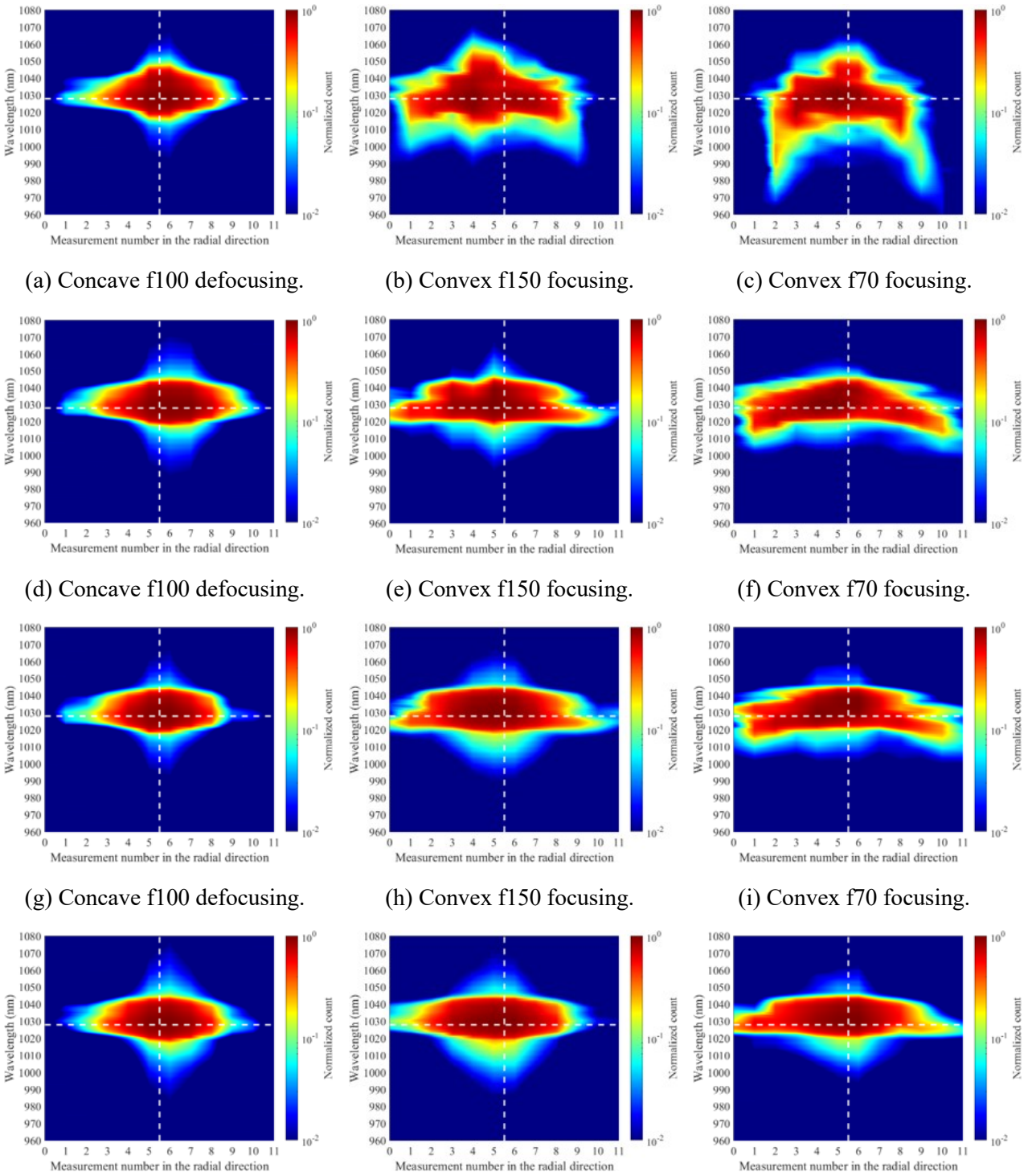
Fig. 4.4 Pulse duration dependence of transmitted energy by bandpass filter.

4-3-2　分光器を用いたレーザ波長プロファイル計測結果

4-3-1 の実験により、大気中の超短パルスレーザ集光において、レーザ強度の高い条件ほど波長変化が生じることが示唆された。波長変化の詳細を測定するために、パルス幅ごとに分光計測を行い、半径方向の波長スペクトルを取得した。未集光の平凹レンズ f100（焦点距離 100 mm）条件と平凸レンズ f150 集光条件、平凸レンズ f70 集光条件の波長プロファイル測定結果を、代表的なパルス幅 180 fs、500 fs、1 ps、4 ps 条件において、Fig. 4.5 に示す。点線で中心波長と半径中心を示した。半径方向の計測位置は精密ではないため、半径中心は参考値である。

パルス幅 180 fs の集光条件では、ビーム中心部でレッドシフト、外周部で顕著なブルーシフトが観察される。このシフト量は f150 条件では約 10 nm のレッドシフトと約 25 nm のブルーシフトであり、f70 条件では約 10 nm のレッドシフト、約 50 nm のブルーシフトであった。集光が強くなるほど波長変化量が大きく、4-3-1 の透過エネルギー変化を説明できる。パルス幅 500 fs、1 ps の f150 条件と f70 条件では、レッドシフトは観察できないが、ブルーシフトの成分が半径方向に広がることが観察される。パルス幅 4 ps 条件の f150 条件では大きな差異は観察されず、f70 条件でブルーシフトした成分が半径方向にやや広がる程度である。波長シフトはほとんど生じていないため、4-3-1 では透過エネルギー損失が生じなかったと考えられる。したがって、レッドシフトはパルス幅 180 fs の高強度条件のみで生じ、集光時の波長変化は主にブルーシフトであると言える。光カー効果はレッド方向、ブルー方向の両方向に波長スペクトルを広げるのに対して、大気の電離によるプ

ラズマデフォーカスはブルー方向のみに波長スペクトルを広げるため、光カー効果は高強度条件においてはわずかな寄与しか示さないと考えられる。本実験条件における支配的な非線形光学現象は大気の電離であることが示唆される。



(a) Concave f100 defocusing. (b) Convex f150 focusing. (c) Convex f70 focusing.

(d) Concave f100 defocusing. (e) Convex f150 focusing. (f) Convex f70 focusing.

(g) Concave f100 defocusing. (h) Convex f150 focusing. (i) Convex f70 focusing.

(j) Concave f100 defocusing. (k) Convex f150 focusing. (l) Convex f70 focusing.

Fig. 4.5 Laser wavelength spectrum measurement under various conditions. (a)-(c) For a pulse width of 180 fs. (d)-(f) For a pulse width of 500 fs. (g)-(i) For a pulse width of 1 ps. (j)-(l) For a pulse width of 4 ps.

4-4　集光特性の数値計算結果

4-4-1　集光時レーザ強度分布のパルス幅依存性

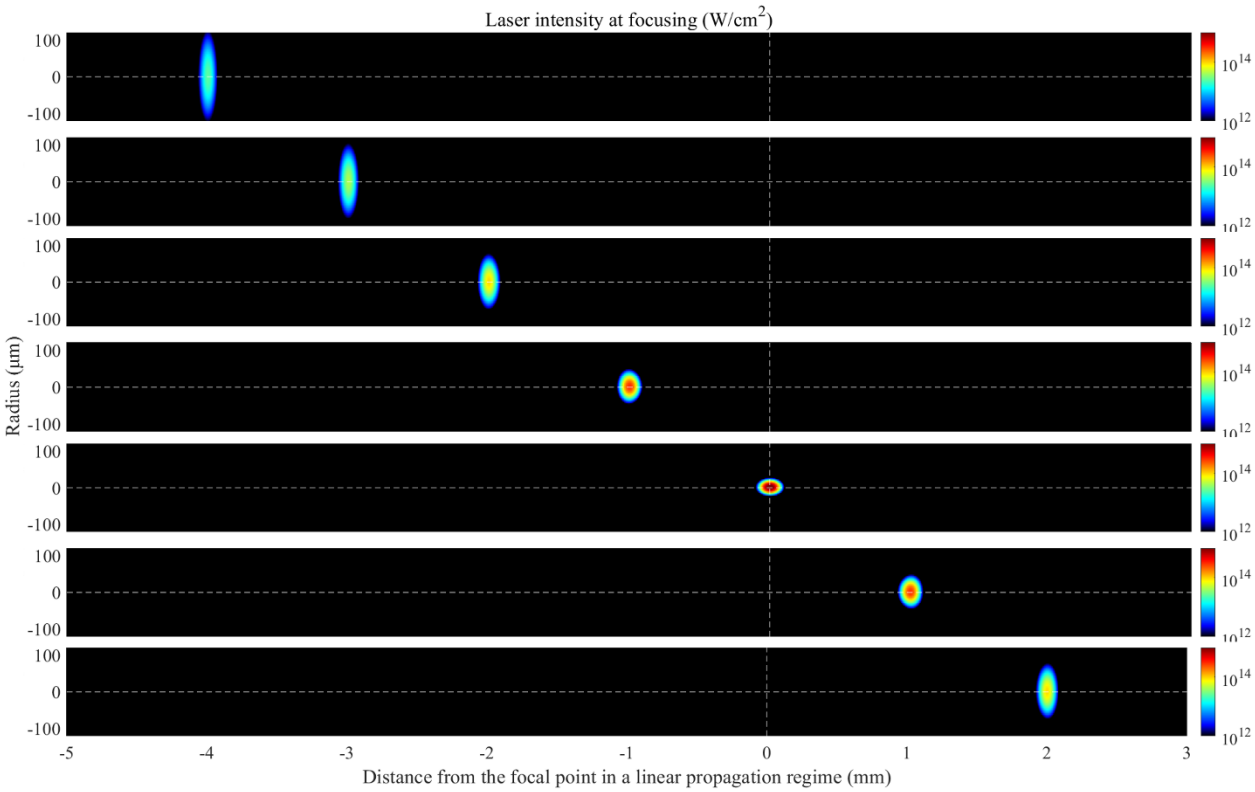
超短パルスレーザ集光特性を可視化するために、非線形伝搬計算を行った。初めに、レーザ集光時の各伝搬位置における強度分布を示す。この際、線形伝搬領域における集光位置を原点とし、伝搬軸を取ることとした。それぞれのパルス幅について、線形集光と非線形集光時のレーザ強度分布変化を Fig. 4.6 に示す。計算結果は伝搬刻みに応じて動画形式で保存されるが、紙面ではパルス中心が上流 4 mm から下流 2 mm まで、1 mm ごとの各位置におけるレーザ強度の時空間分布を示すこととする。

Fig. 4.6(a),(b)はパルス幅 180 fs における線形集光時と非線形集光時のレーザ強度分布変化である。Fig. 4.6(a)では、集光時の強度分布は時間方向、空間方向ともに、常にガウシアン分布を持つ。上流から焦点位置に向かって集光し、焦点位置にて最小径と最大のレーザ強度を取り、その後方ではレーザが発散する。このときのピークレーザ強度は 1.3×10^{15} W/cm^2 である。大気の電離が顕著となるレーザ強度は 10^{13}~10^{14} W/cm^2 であるため、大気の非線形光学現象を無視できないことが予測される。Fig. 4.6(b)の非線形集光時では、上流 2 mm まではおおよそガウシアン分布が維持されているが、上流 1 mm 位置では強度分布に時間方向と空間方向のゆがみが生じ、焦点位置ではレーザが広がっている。すなわち、上流 1 mm 位置付近で最も集光する結果となる。焦点位置後方では中心部とリング状にレーザ強度が高まることが分かる。このときのピークレーザ強度は 1.5×10^{14} W/cm^2 であり、線形集光時と比較して、ピークレーザ強度は約 10%に減少している。

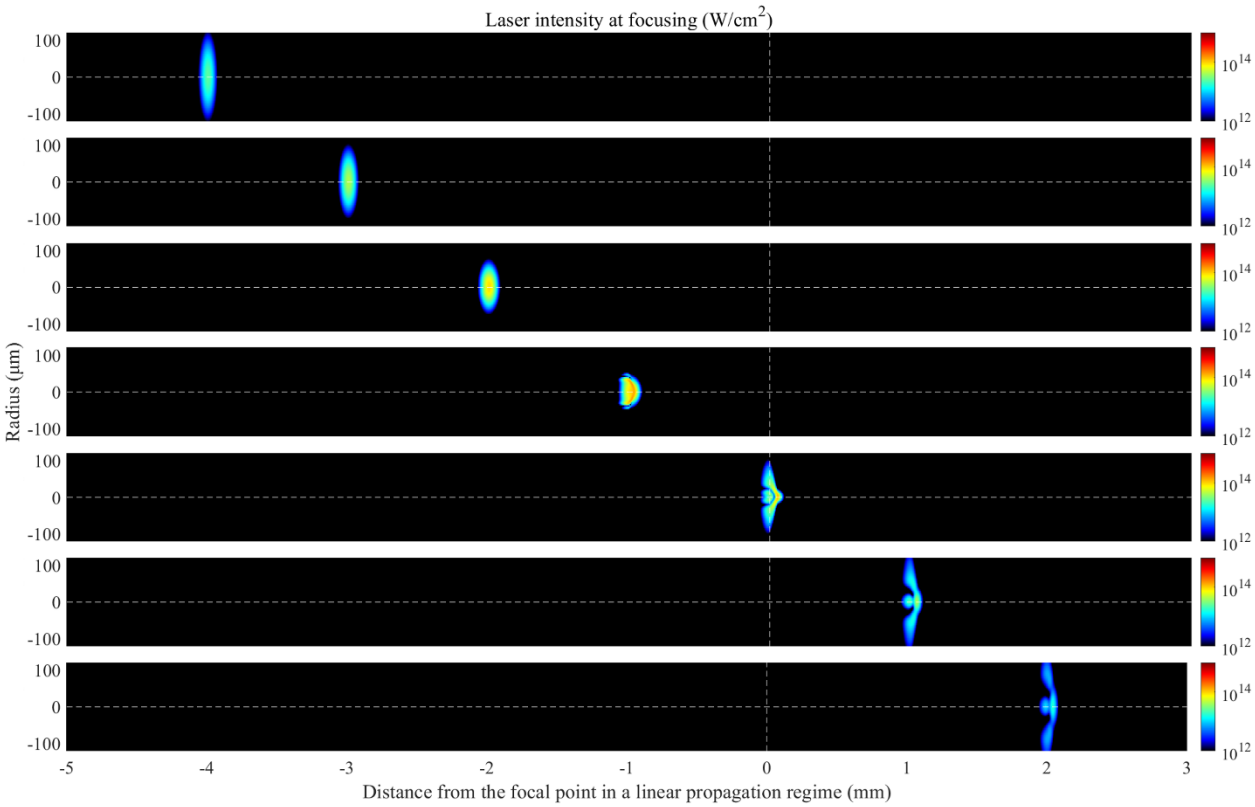
Fig. 4.6(c),(d)はパルス幅 1 ps における線形集光時と非線形集光時のレーザ強度分布変化である。パルス幅が長くなることで、伝搬方向に長いパルスが存在する。Fig. 4.6(c)は線形集光の場合で、時間方向と空間方向ともに常にガウシアン分布である。このときのピークレーザ強度は 2.4×10^{14} W/cm^2 である。パルス幅が長くなることで、理想的なピークレーザ強度も低下する。Fig. 4.6(d)の非線形集光時では、上流 1 mm ではまだ顕著な変化は見られない。しかしながら、焦点位置ではレーザがやや発散しており、パルス後方で外側への広がりが見られる。すなわち、上流 1 mm から焦点位置までの間でレーザが発散すると考えられる。このときのピークレーザ強度は 9.3×10^{13} W/cm^2 であった。線形集光時と比較して、ピークレーザ強度は 40%程度に減少している。パルス幅 180 fs よりもレーザ強度の低下割合は小さい。

Fig. 4.6(e),(f)はパルス幅 4 ps における線形集光時と非線形集光時のレーザ強度分布変化である。パルス幅 4 ps 条件では、線形集光と非線形集光時に顕著な差は見られない。線形集光時のピークレーザ強度は 6.0×10^{13} W/cm^2 であり、非線形集光時のピークレーザ強度は 5.5×10^{13} W/cm^2 で、ほとんど低下していない。

以上より、パルス幅が短くレーザ強度の高い条件では、集光時に焦点よりも上流側でのレーザ発散や強度分布変化が生じ、理想的な集光から逸脱し、理想的なレーザ強度を得られない。パルス幅が短い条件ほどピークレーザ強度は高いが、パルス幅の長い条件ほど線形集光に近く、フルエンスは高くなることが分かる。

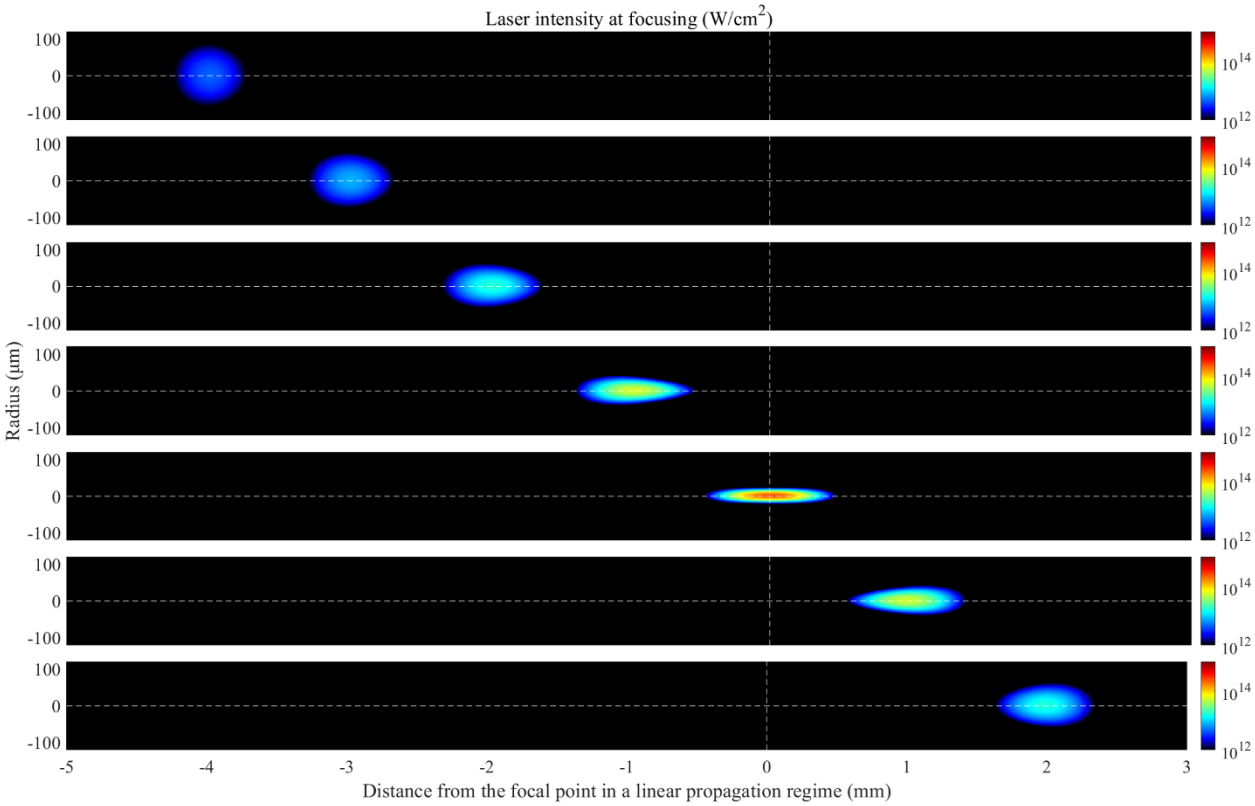


(a) In a linear propagation regime for a pulse width of 180 fs.

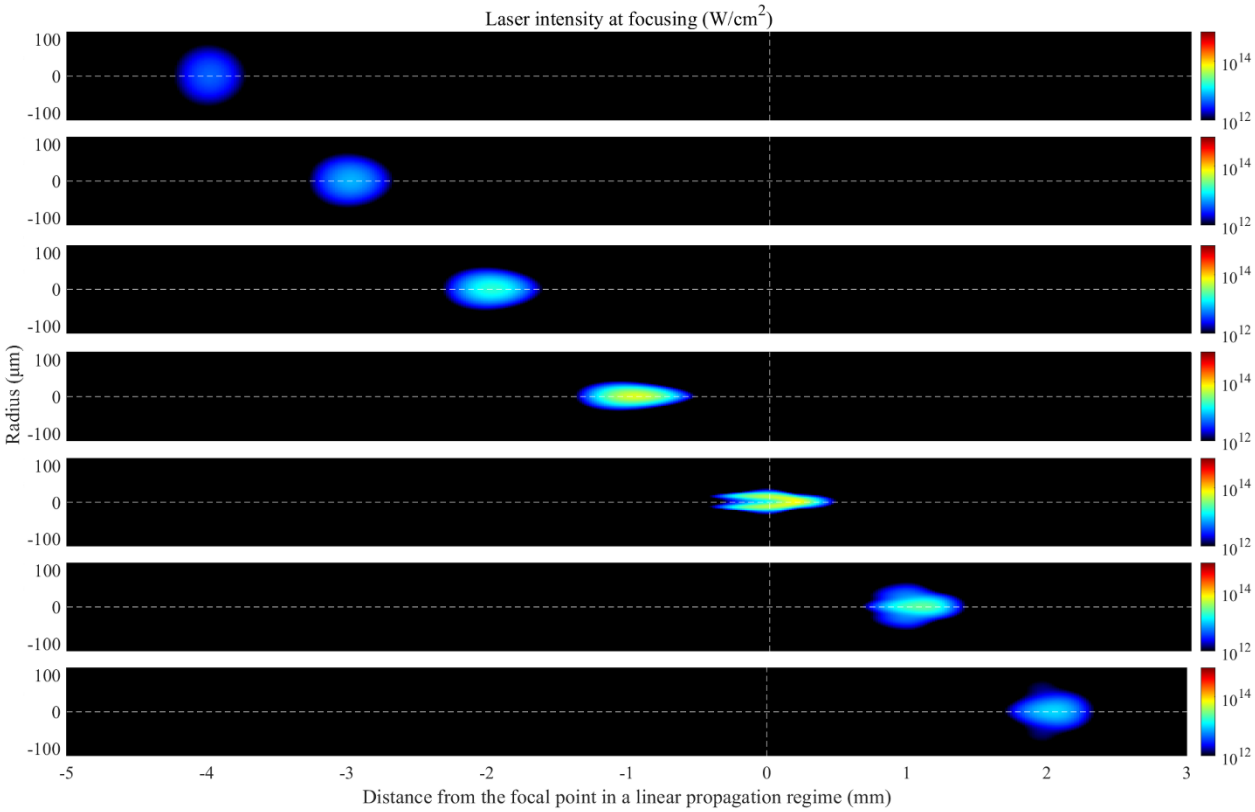


(b) In a nonlinear propagation regime for a pulse width of 180 fs.

Fig. 4.6 Intensity distribution at laser focus under various conditions.

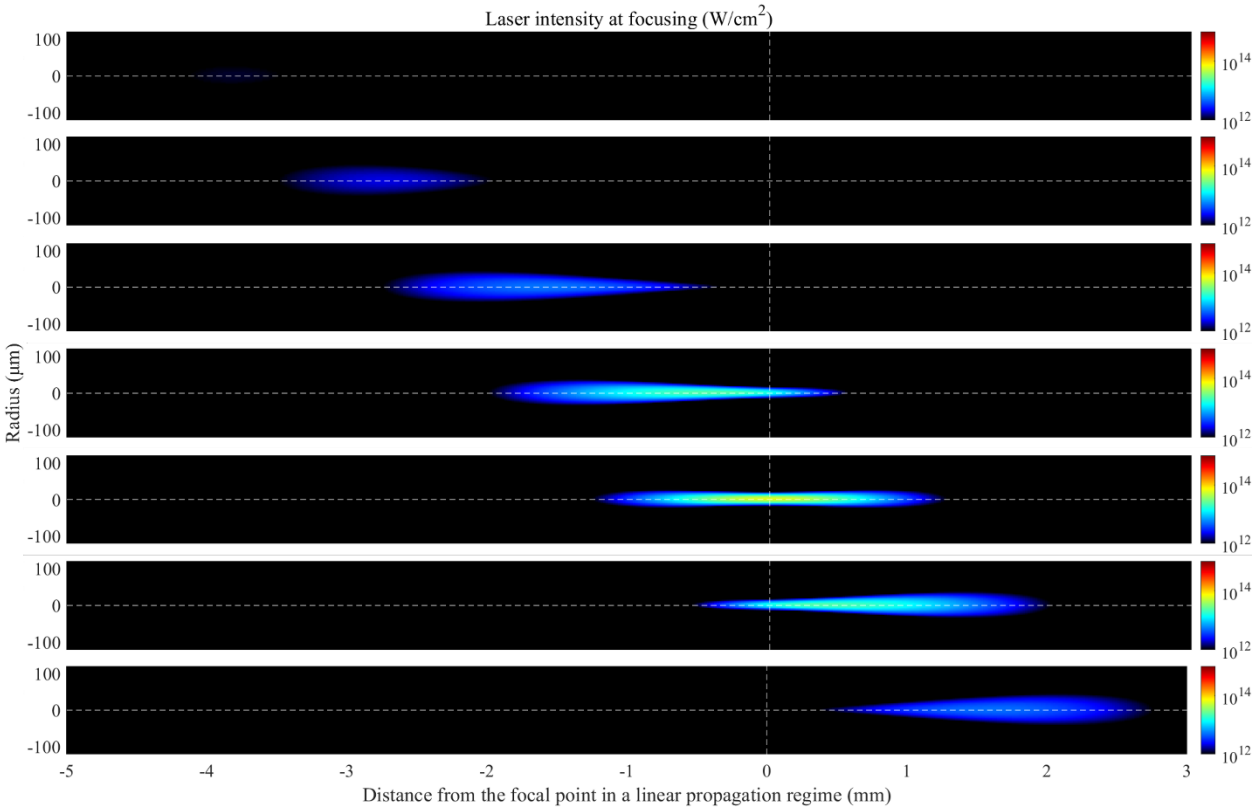


(c) In a linear propagation regime for a pulse width of 1 ps.

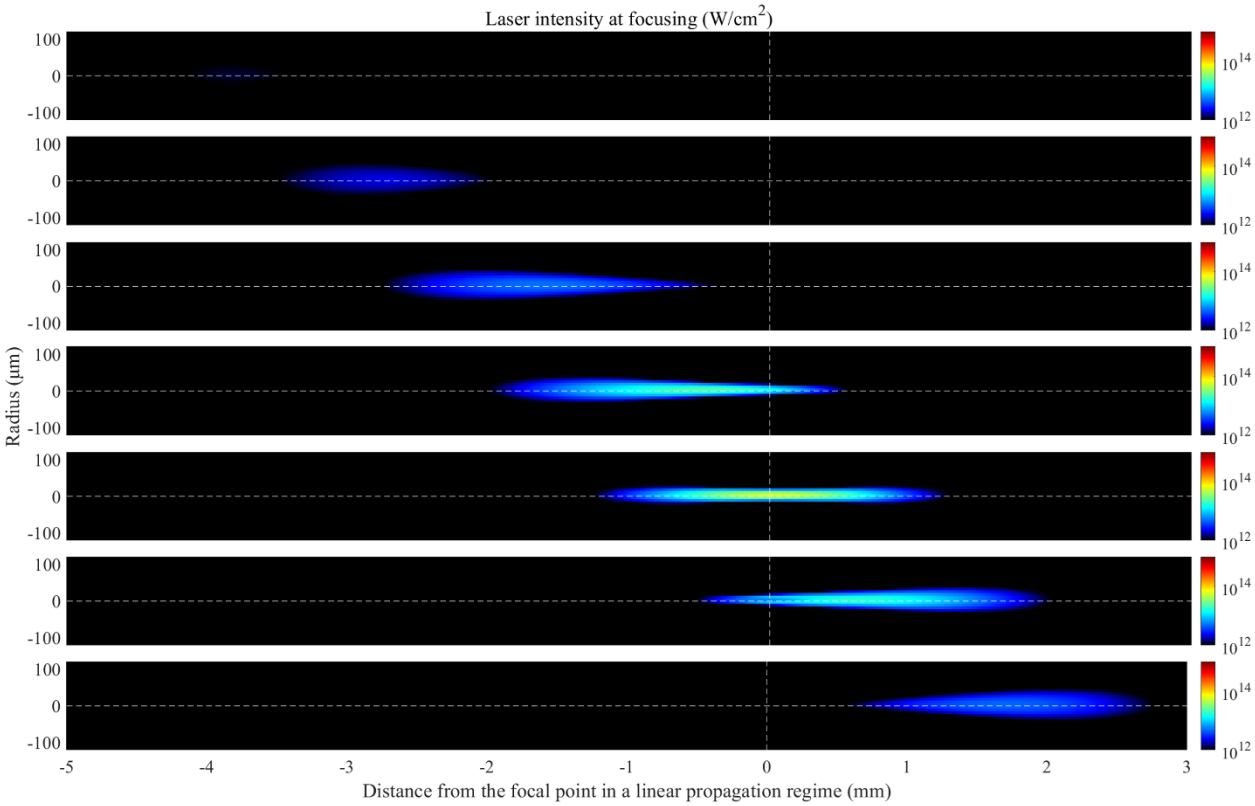


(d) In a nonlinear propagation regime for a pulse width of 1 ps.

Fig. 4.6 Continued.



(e) In a linear propagation regime for a pulse width of 4 ps.

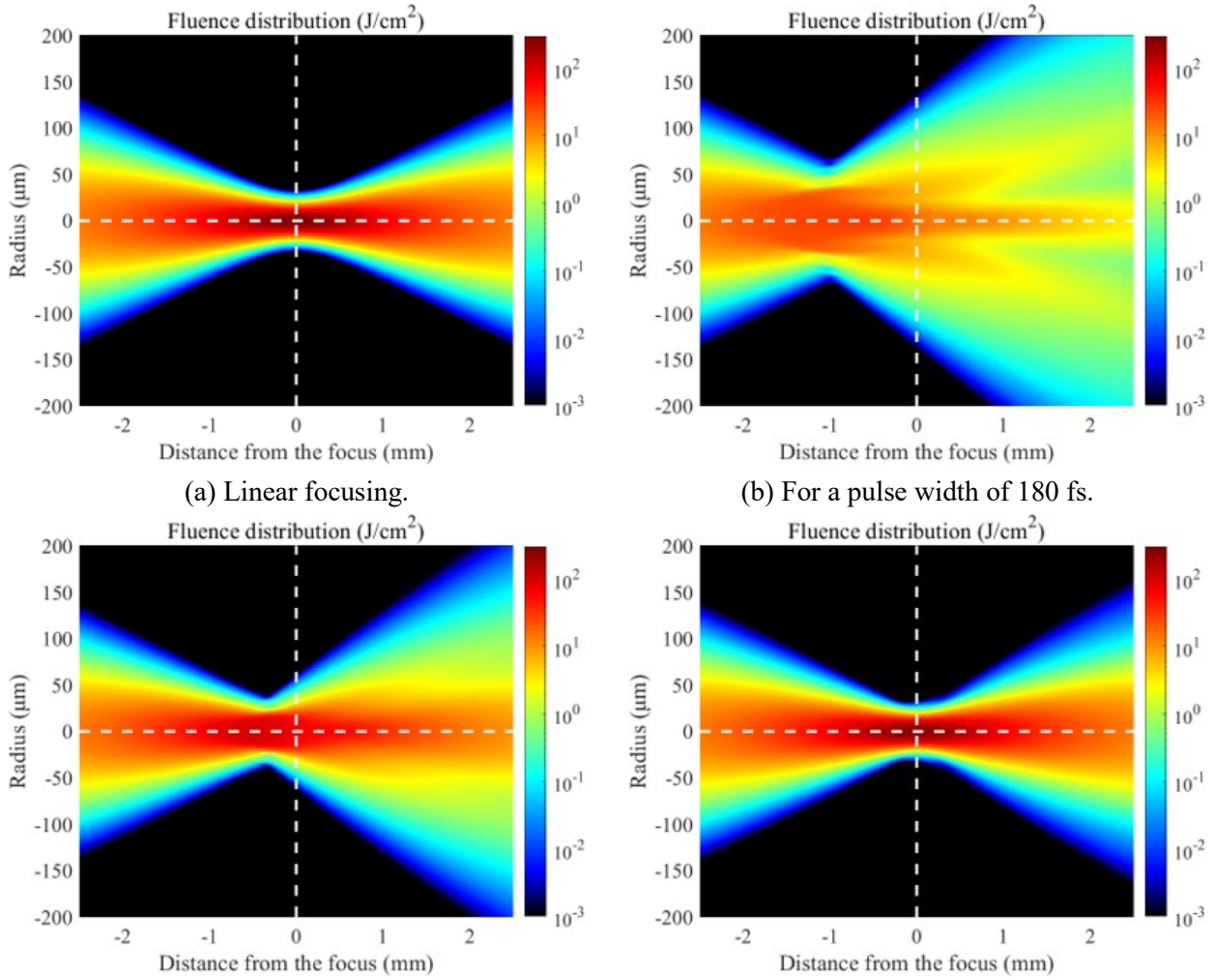


(f) In a nonlinear propagation regime for a pulse width of 4 ps.

Fig. 4.6 Continued.

4-4-2　集光時フルエンス分布のパルス幅依存性

超短パルスレーザ集光時には、上流側でのレーザ発散現象や強度分布に変化が生じることが示された。超短パルスレーザ加工においては、レーザ強度の他に、単位面積あたりに照射されるエネルギー量であるフルエンス分布も重要である。フルエンス分布は各位置を通過するレーザ強度分布と微小時間の積により求めた。線形集光時のフルエンス分布を Fig. 4.7(a)に、パルス幅 180 fs、1 ps、4 ps の非線形集光時のフルエンス分布をそれぞれ Fig. 4.7(b)-(d)に、対数カラースケールを用いて示す。線形集光時には、焦点位置に対して対称的なフルエンス分布であり、最大フルエンスは 300 J/cm^2 である。パルス幅 180 fs 条件では、焦点位置よりも上流側でレーザが発散することにより、フルエンス分布も上流側で発散し、最も集光する位置はシフトすることが示された。最大フルエンスは 30 J/cm^2 であり、線形集光時の 10%程度に減少することが示された。パルス幅 1 ps 条件では、同様に焦点位置よりも上流側で発散するが、そのシフト量は 180 fs 条件よりも小さい。これはレーザ強度が低下したことにより、発散の影響が抑制されたためである。最大フルエンスは 100 J/cm^2 であった。パルス幅 4 ps 条件では、上流側での発散は観察されない。最大フルエンスは 250 J/cm^2 であり、集光特性の変化はわずかである。以上より、パルス幅が短く、高強度条件になるほど集光特性変化が大きく、最大フルエンスに制約が生じることが示された。



(a) Linear focusing.　(b) For a pulse width of 180 fs.

(c) For a pulse width of 1 ps.　(d) For a pulse width of 4 ps.

Fig. 4.7 Fluence distribution (log scale) at focusing for each condition.

4-4-3　集光時フルエンス分布と照射領域、アブレーション領域推移の比較

フルエンス分布の計算結果の妥当性を検証するため、第 3 章の実験による照射領域推移 Fig. 3.6、アブレーション領域推移 Fig. 3.11 と比較する。照射領域推移は LIPSS で判定しているため、パルス幅によらず、0.01 J/cm^2 を閾値として比較が可能である。アブレーション領域は Fig. 3.11 のように連続的に変化するものであり、比較を行うためにアブレーション深さの基準を設ける必要がある。本研究では、レーザ照射 8 発あたりに 0.5 μm のアブレーション深さを閾値として比較を行う。

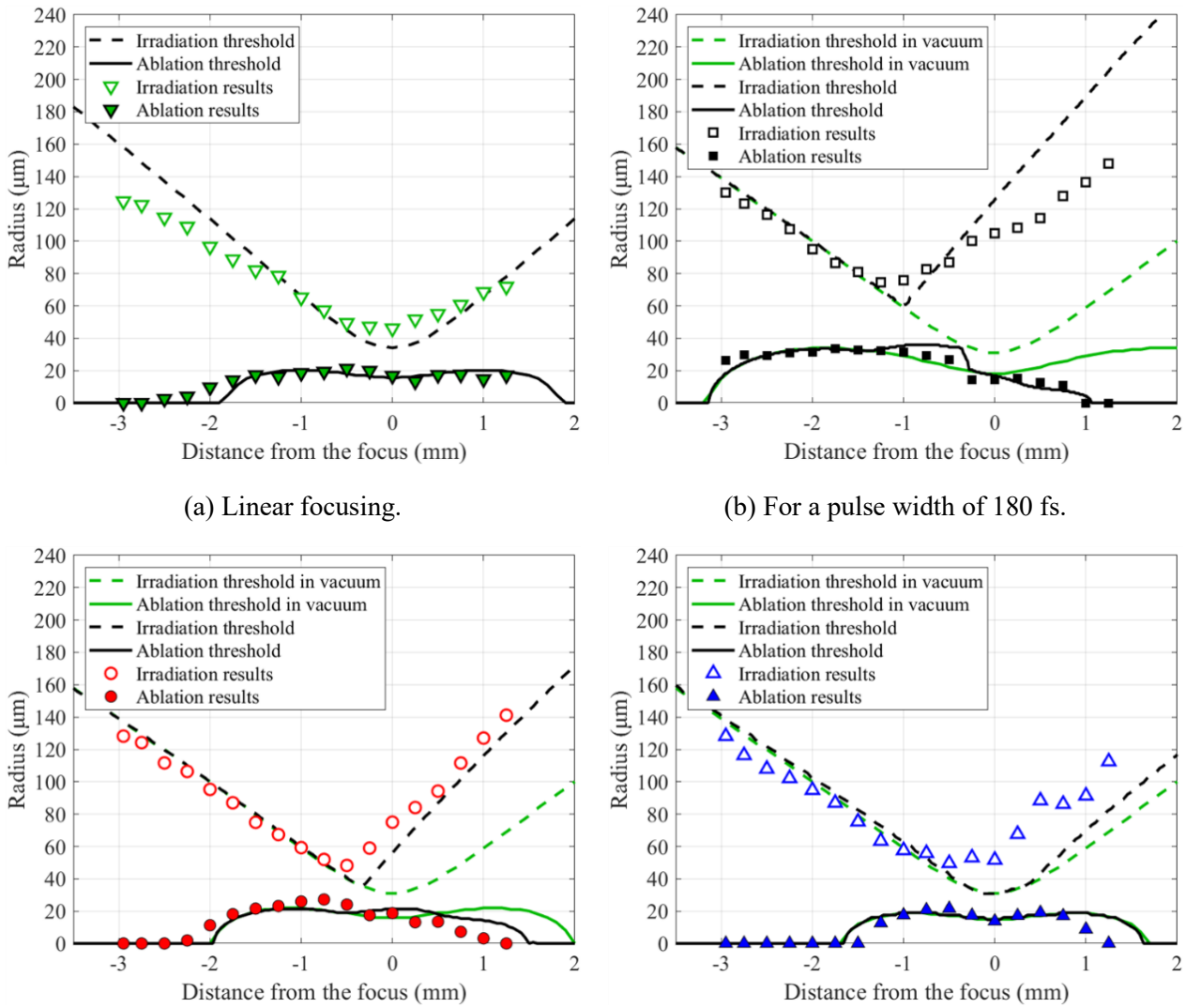
パルス幅に応じてアブレーションに必要なフルエンスは異なるため、数値計算ごとにフルエンス閾値を与えた。計算されたフルエンス分布とアブレーション閾値の比較が最も良い一致を示すフルエンス閾値は、パルス幅 180 fs では 9 J/cm^2、パルス幅 1 ps では 22 J/cm^2、パルス幅 4 ps では 30 J/cm^2 であった。計算されたフルエンス分布において、これらのフルエンス閾値を超える線を描き、実験による照射領域推移、アブレーション領域推移をプロットした結果が Fig. 4.14 である。線形集光時の閾値の線を緑色で示している。

真空条件下では理想的な集光が期待されるが、実験結果との誤差を生じており、これは実験におけるビーム品質 M2 や光路調整の誤差から生じたと考えられる。ただし、照射領域推移において最も集光する位置やアブレーション領域の推移は比較可能な範囲に収まる。パルス幅 180 fs 条件では、レーザ照射領域の発散角度に誤差が生じるが、発散位置は実験結果とおよそ一致する。また、アブレーション領域推移も良好に一致しており、特に、発散位置後方での変化を良く再現できている。

パルス幅 1 ps 条件では、レーザ照射領域の発散角度の一致も良く、発散位置は実験結果とわずかな誤差で一致する。アブレーション領域は焦点位置よりも上流側で良く一致し、焦点位置後方ではやや過小評価した。しかし、線形集光時よりもアブレーション領域が減少することは再現されており、実験上生じる誤差を考慮すると十分な一致である。

パルス幅 4 ps 条件では、レーザ照射領域の推移には実験結果との差異が見られる。計算上は線形集光時と差異はほとんどないが、実験結果には広がりが観察されている。このため、パルス幅の長い条件での非線形光学効果の計算においては誤差が生じる可能性がある。一方、アブレーション領域の実験結果は焦点位置に対して対称的であり、計算されたフルエンス分布はそれを再現しているため、定性的に現象を記述できている。

上記の検証により、非線形伝搬計算によるフルエンス分布は、レーザが顕著に発散する条件で特に優れた再現性を持っている。ただし、レーザの発散角度は電離量の確率的な影響や強度分布の乱れを受けやすいため、実験結果との一致には限界がある。また、アブレーション領域推移との一致は良好であり、非線形光学効果が線形集光時と比較してどのような影響を及ぼすかを可視化できる。このような数値シミュレーションは、非線形光学効果が照射領域の形成に与える影響を定量的に理解する上で重要であることが示された。



(a) Linear focusing.

(b) For a pulse width of 180 fs.

(c) For a pulse width of 1 ps.

(d) For a pulse width of 4 ps.

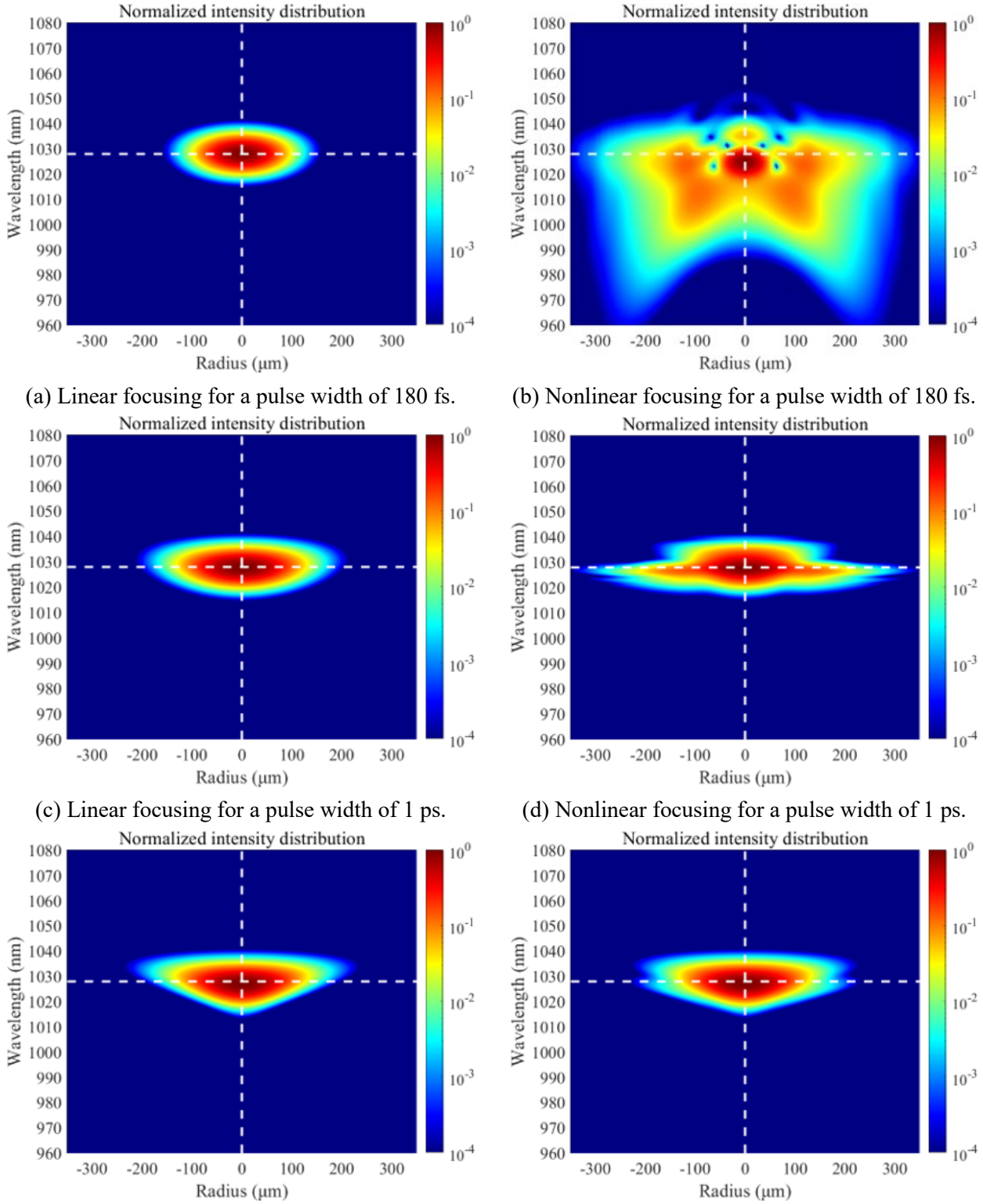
Fig. 4.8 Comparison of experimental and computed results for transitions in irradiation and ablation areas for each condition.

4-4-4　大気の非線形光学現象による周波数スペクトル変化

大気の非線形光学現象は自己位相変調により、周波数スペクトル（波長スペクトル）に変化をもたらす。実験的に取得した波長スペクトル Fig. 4.5 と比較するために、数値計算による波長スペクトルの変化を示す。ガウシアンレーザ集光時の初期条件を定義することにより、周波数スペクトルはパルス幅に応じてやや歪みを生じることに留意する。パルス幅 180 fs では焦点より 3 mm 下流位置、パルス幅 1 ps、4 ps では焦点より 4 mm 下流位置での波長スペクトルを、線形集光時と非線形集光時のそれぞれについて Fig. 4.9 に示す。

Fig. 4.9(a),(b)のパルス幅 180 fs 条件では、主にブルー方向に波長が広がり、半径の外側に顕著なブルーシフトが生じる。また、半径中心においてはレッド方向へのシフトが見られる。Fig. 4.9(c),(d)のパルス幅 1 ps 条件では、ブルーシフトが生じ、線形集光時と比較して非線形集光時のレッドシフトは見られない。Fig. 4.9(e),(f)のパルス幅 4 ps 条件では、わずかなブルーシフトが見られる。

これらの結果は、Fig. 4.5 の実験結果の傾向に一致する。Fig. 4.5 の実験結果は定性的な言及にとどまるため、非線形伝搬計算による周波数スペクトル変化は良く再現できていると言える。主にブルーシフトが生じることから、プラズマによる非線形光学現象が支配的であることが示される。



(a) Linear focusing for a pulse width of 180 fs.

(b) Nonlinear focusing for a pulse width of 180 fs.

(c) Linear focusing for a pulse width of 1 ps.

(d) Nonlinear focusing for a pulse width of 1 ps.

(e) Linear focusing for a pulse width of 4 ps.

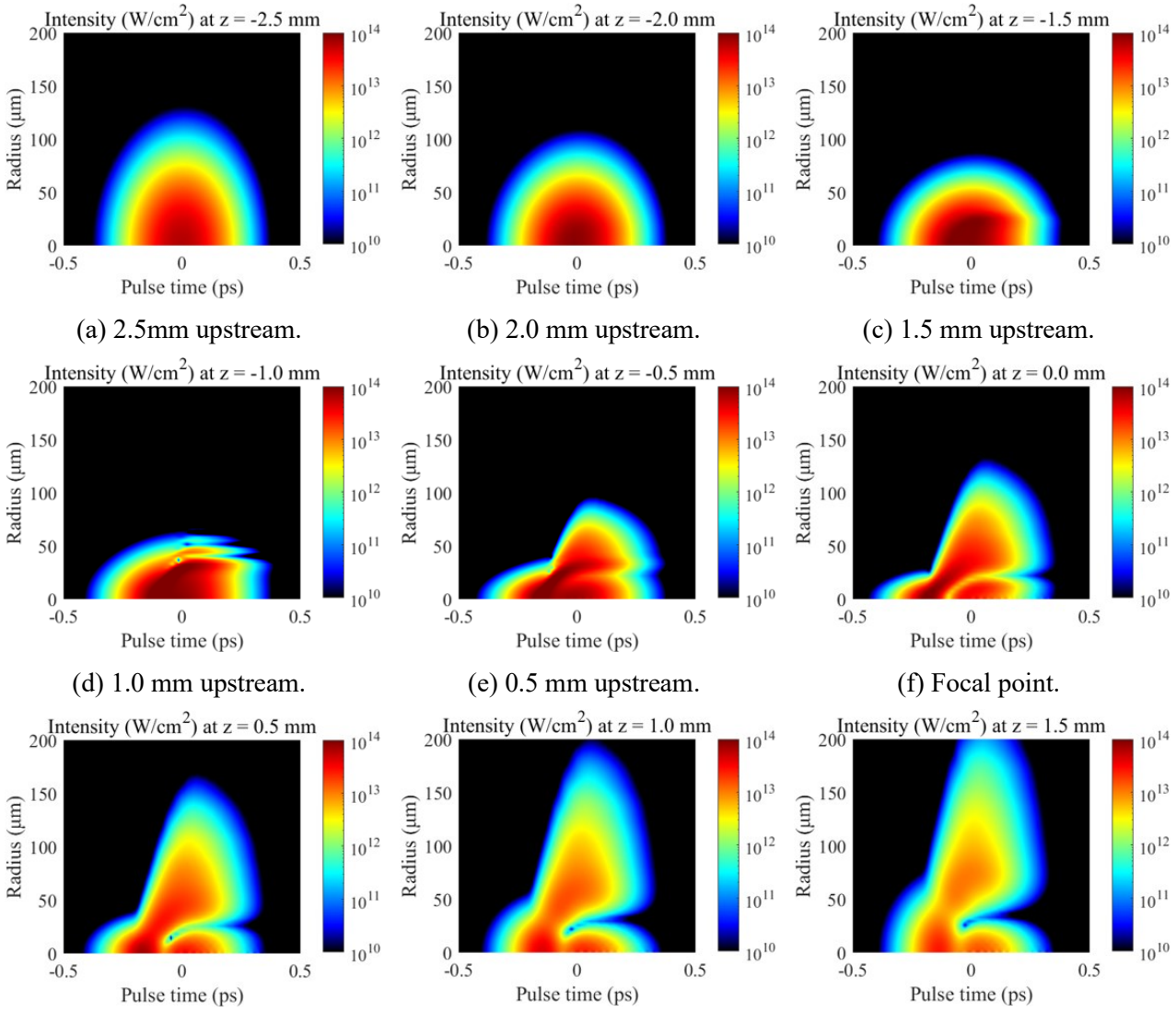
(f) Nonlinear focusing for a pulse width of 4 ps.

Fig. 4.9 Laser intensity distribution in the frequency domain behind the focal point.

4-4-5　集光時の各位置における時空間強度分布

レーザ伝搬への非線形光学現象の影響を見積もる上で、集光時の各位置におけるレーザ強度の時空間分布を示すことは有意義である。レーザ集光特性変化が顕著なパルス幅 180 fs 条件におけるレーザ強度の時空間分布を Fig. 4.10 に示す。

焦点位置から 2.0 mm 上流まではパルスは時空間方向にガウシアン分布を維持する。しかし、1.5 mm 上流でパルス後方に歪みが生じ始めている。この歪みはプラズマの蓄積によるものであると考えられる。上流 1.0 mm では、パルス中心にも歪みが広がっており、集光に伴うレーザ強度の増加により、パルス前半で十分なプラズマの蓄積が生じたためと考えられる。焦点位置より後方ではパルス形状に大きな変化は見られず広がりが生じるのみであるため、焦点位置より後方では大気のプラズマは生じにくいことが示唆される。



(a) 2.5mm upstream.　(b) 2.0 mm upstream.　(c) 1.5 mm upstream.

(d) 1.0 mm upstream.　(e) 0.5 mm upstream.　(f) Focal point.

(g) 0.5 mm downstream.　(h) 1.0 mm downstream.　(i) 1.5 mm downstream.

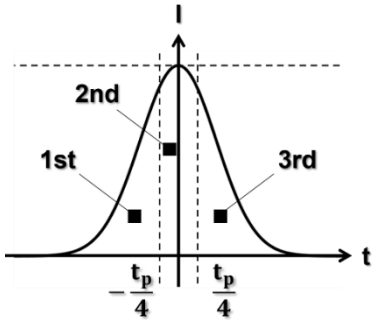
Fig. 4.10 The laser spatio-temporal profiles at specific distances from 2.5 mm upstream to 1.5 mm downstream for a pulse width of 180 fs.

4-4-6　光カー効果の影響

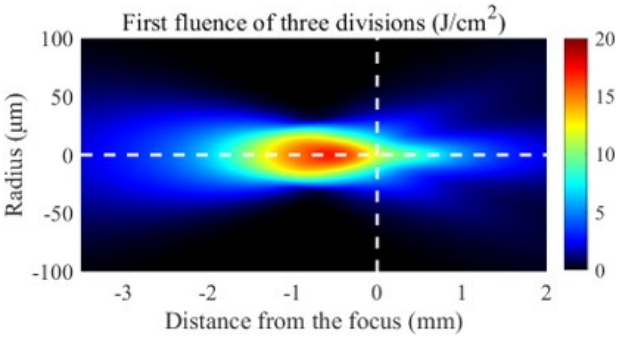
光カー効果は自己集束や自己位相変調による周波数スペクトルの拡大に寄与する非線形光学効果である。本実験条件において、自己集束は顕著ではなく、レッドシフトもわずかであることから、光カー効果の影響は小さいことが示唆される。一方、パルス幅 180 fs 条件において、Fig. 4.7(b)のフルエンス分布結果より、最集光位置よりも後方で中心部のフルエンスは周囲よりも高く、光カー効果が寄与する可能性がある。光カー効果を無視した条件で非線形伝搬計算を行うことで、パルス内の時間ごとの変化がフルエンス分布に与える影響を調査できる。

Fig. 4.11(a)に示すように、エネルギー比がおよそ等しくなるようにパルスを時間方向に三分割（31%:38%:31%）し、各領域から得られるフルエンス分布を Fig. 4.11(b)-(d)に示す。パルスの最初の領域では、最集光位置である上流 1.5 mm よりも集光しており、レーザ中心で高いフルエンスを維持することが分かる。パルス中心を含む 2 つ目の領域では、プラズマの蓄積による発散を受け、上流 1.5 mm 位置で発散することが示される。パルス後方の領域 3 ではさらに発散が強まり、中心部と外周部にフルエンスが集中するリングフォーメーションと呼ばれる形状となる。

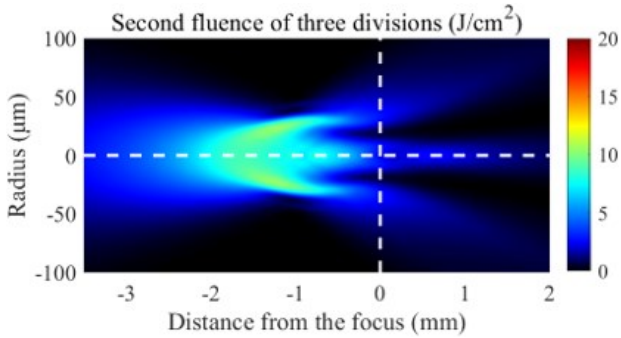
したがって、パルスレーザの最集光位置や発散角度はパルス後半部分によって決まっており、最集光位置よりも後方で中心部のフルエンスがやや高くなる理由は、パルス前半部分の集光によるものであると結論できる。このような現象は、光カー効果に関係なく生じている。本計算のような強い集光条件では、レーザフィラメンテーション分野と異なり、光カー効果による自己集束の効果は小さいことが示された。



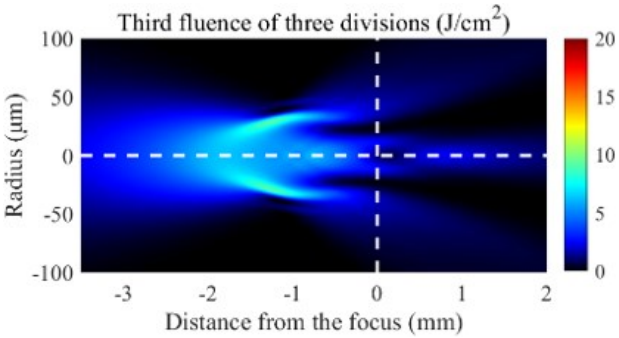
(a) Schematic diagram illustrating the temporal trisection of the pulse.



(b) From first region.



(c) From second region.



(d) From third region.

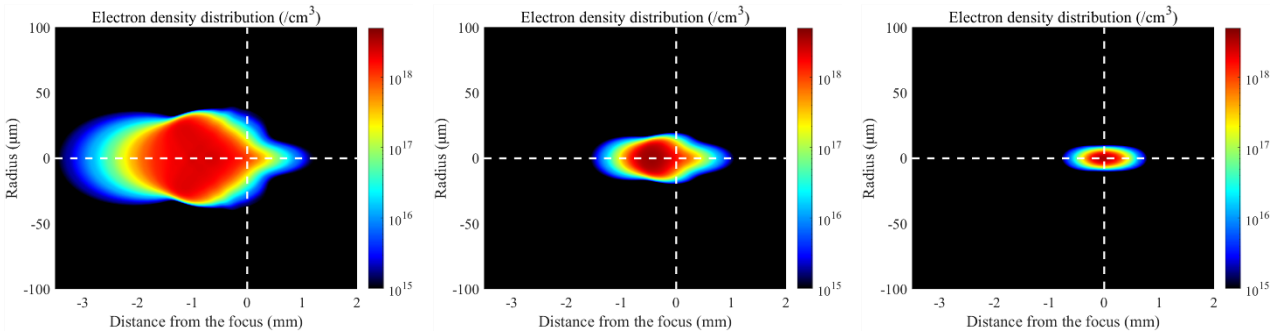
Fig. 4.11 The fluence distributions formed from each temporal region.

4-4-7　プラズマ生成のパルス幅依存性

光の発散作用や波長のブルーシフトが主であることから、屈折率を減少する電子密度の影響が大きいことが示唆された。そこで、電離によって生じる電子密度の計算結果をパルス幅ごとに示す。Fig. 4.12(a)-(c)は非線形伝搬計算終了時のパルス幅 180 fs、1 ps、4 ps における自由電子密度を示す。Fig. 4.12(d)-(f)はそれらの電子密度に対する酸素イオンの割合、Fig. 4.12(g)-(i)はそれらの電子密度に対する窒素イオンの割合を示す。大気の酸素分子の初期密度は 5.4×10^{18} /cm^3、窒素分子の初期密度は 2.2×10^{19} /cm^3 であり、中性分子の初期密度は 2.7×10^{19} /cm^3 である。

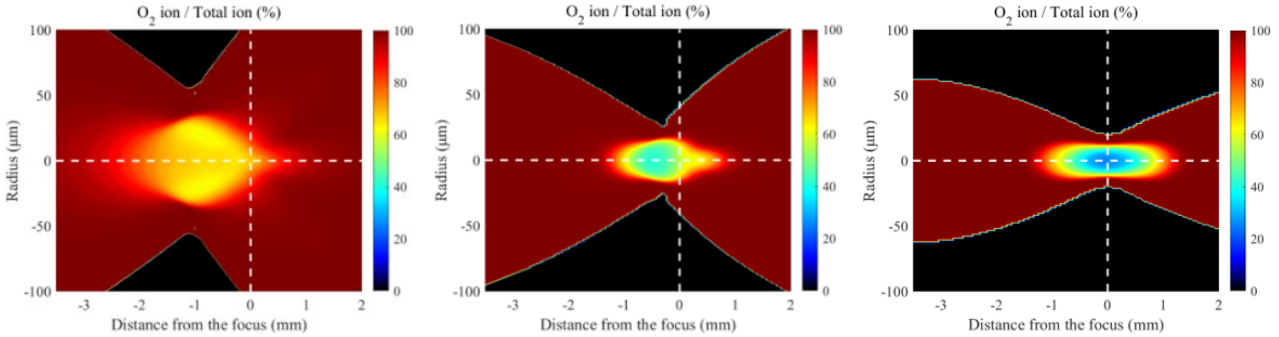
計算上の最大電子密度は、パルス幅 180 fs では 2.5×10^{18} /cm^3、1 ps では 4.0×10^{18} /cm^3、4 ps では 3.5×10^{18} /cm^3 に達し、全ての条件で大気のおよそ 10%が電離したことを表す。パルス幅 180 fs 条件では上流でのプラズマ生成量が多く、上流でのレーザ発散に寄与すると考えられる。最集光位置である上流 1 mm 付近で最もプラズマを生成し、それ以降はレーザ発散に伴いプラズマ生成量も減少する。パルス幅 1 ps ではプラズマ生成位置は焦点位置に近付き、上流約 0.5 mm で最大プラズマ生成量となる。パルス幅 4 ps では焦点位置で最大プラズマ生成量となり、焦点位置に対して対称的であるため、非線形光学現象の影響は小さい。

また、酸素イオン、窒素イオンの割合を見ると、焦点から離れた位置では基本的に酸素イオンが 100%の領域である。これは窒素よりも酸素の電離閾値が小さく、窒素の電離の生じない低レーザ強度でも酸素の電離は発生するためである。最もプラズマ密度の高い領域では窒素イオンの割合が増加し、180 fs 条件では最大 39%、1 ps 条件では最大 59%、4 ps 条件では最大 75%まで増加した。これは、十分にレーザ強度が高まり窒素分子のレーザ電離の増加、もしくは窒素分子の衝突電離の増加が理由である。これらの結果は電離メカニズムごとに電離量を算出することで理解できる。

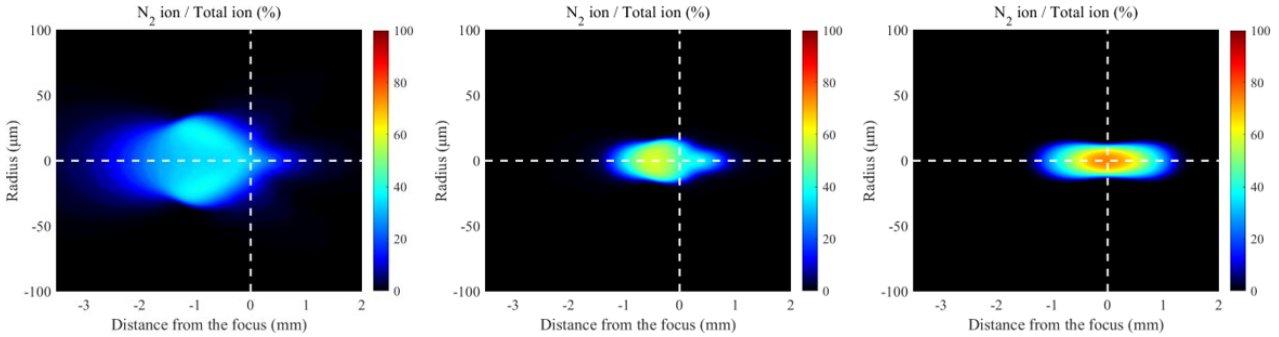


(a) For a pulse width of 180 fs.　(b) For a pulse width of 1 ps.　(c) For a pulse width of 4 ps.

Fig. 4.12 (a)-(c) The free electron density distribution, calculated for a pulse width 180 fs, 1 ps, 4 ps, respectively. (d)-(f) The proportion of oxygen ions in the total electron density. (g)-(i) The proportion of nitrogen ions in the total electron density.



(d) For a pulse width of 180 fs. (e) For a pulse width of 1 ps. (f) For a pulse width of 4 ps.



(g) For a pulse width of 180 fs. (h) For a pulse width of 1 ps. (i) For a pulse width of 4 ps.

Fig. 4.12 Continued.

4-4-8　電離メカニズムのパルス幅依存性

プラズマ生成を理解する上で、レーザ電離と衝突電離による電離量を知ることは重要である。Fig. 4.13(a)-(c)に、ある伝搬位置においてパルス中心が存在する際の酸素分子と窒素分子のレーザ電離量と衝突電離量を示す。ここで、酸素分子のレーザ電離量のピーク値を基準に規格化した。また、Fig. 4.13(d)-(f)に、ある伝搬位置においてパルス中心が存在する際の平均電子エネルギーを示す。平均電子エネルギーは数値計算時に空間セル内の電子エネルギーの総量を自由電子の総数で割ることで求めた。

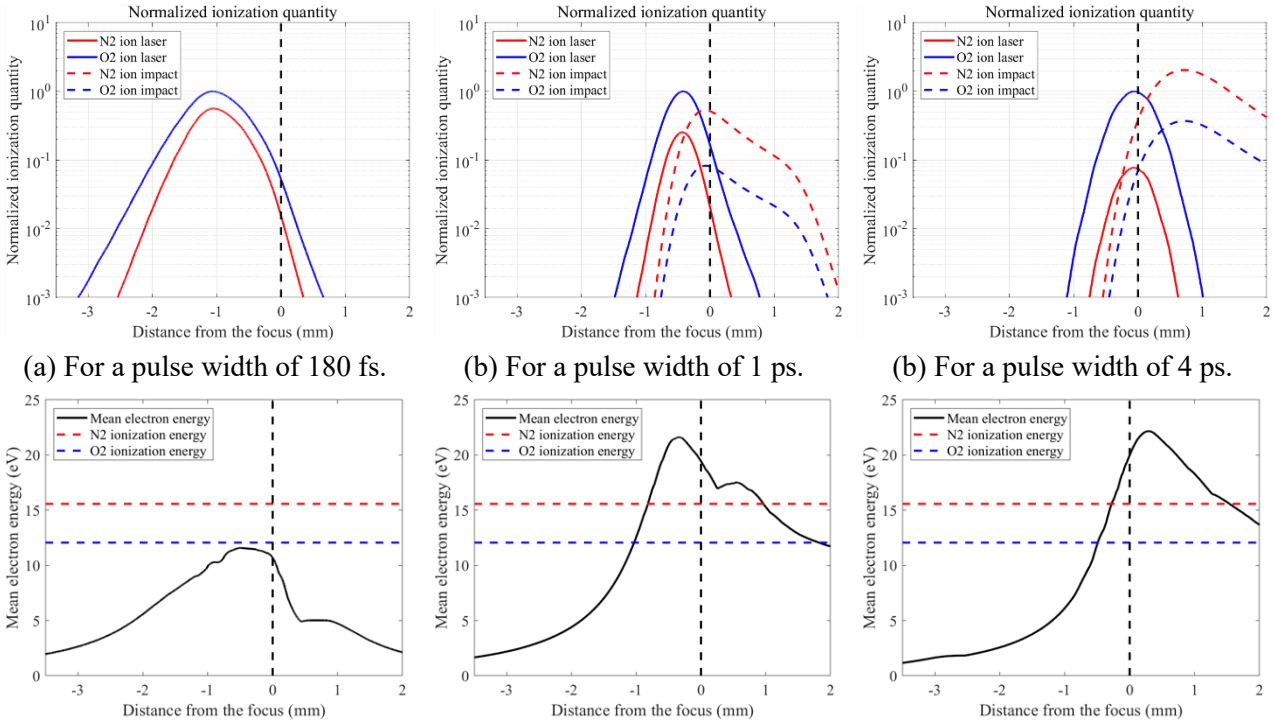
パルス幅 180 fs 条件では、酸素分子のレーザ電離が先行して生じ、窒素分子のレーザ電離は遅れて生じる。上流 3.0 mm では窒素分子の電離量は酸素分子の電離量の 1/10 以下であるが、最集光位置ではおよそ半分に達する。レーザ強度が高まることで、大気中に 80%を含む窒素分子のレーザ電離量が増加したことを表す。一方、衝突電離量はレーザ電離量の 0.1%にも満たない程度である。この状況は、Fig. 4.13(d)に示すように、パルス幅 180fs では逆制動放射によるエネルギー獲得が不足しており、平均電子エネルギーが酸素のイオン化エネルギー未満であるため、多くの電子が衝突電離を起こすことができないことを意味する。

パルス幅 1 ps 条件では、酸素分子と窒素分子のレーザ電離に加えて、衝突電離が生じる。衝突電離はレーザイオン化がピークとなる位置から 0.5 mm 後方、すなわち約 1.7 ピコ秒後に最大となった。これはレーザ電離による自由電子生成後に、プラズマの加熱が逆制動放射によって十分に行われる必要があるためである。また、衝突電離は酸素分子よりも窒素分子の方が多く生じる傾向がある。窒素イオンの第一イオン化エネルギーを超える自由電子エネルギーにおいて、窒素分子の衝突電離断面積が酸素分子の衝突電離断面積よりも大きいことに起因する。また、大気中に窒素分子が

酸素分子の 4 倍含まれるため、窒素分子の衝突電離はより頻繁に発生する。衝突電離はレーザのパルス中心が下流に伝搬した後も数ピコ秒間持続する。これはレーザが通過する間に自由電子エネルギーが上昇し、通過後も高い自由電子エネルギーが持続するためである。

パルス幅 4 ps 条件では、レーザ電離量よりも衝突電離量が増加する傾向が強まり、窒素分子の衝突電離量のピークは酸素分子のレーザ電離量を上回るため、Fig. 4.12(i)に示したように窒素イオンの割合が酸素イオンの割合よりも大きくなった。

以上の結果から、大気のプラズマ生成において、パルス幅に依存したレーザ電離と衝突電離の相違が明らかとなった。しかし、主に衝突電離はパルスレーザ通過後に生じるため、これがレーザとプラズマの相互作用に与える影響は疑問視される。この点については、考察の節で詳しく述べる。



(a) For a pulse width of 180 fs. (b) For a pulse width of 1 ps. (b) For a pulse width of 4 ps.

(d) For a pulse width of 180 fs. (e) For a pulse width of 1 ps. (f) For a pulse width of 4 ps.

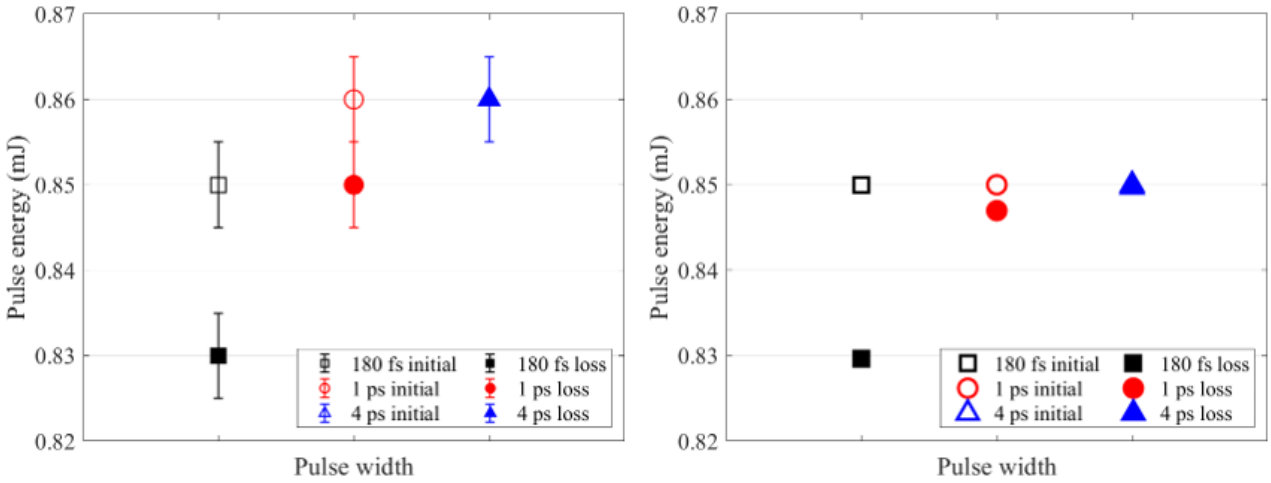
Fig. 4.13 (a)-(c) The amount of ionization per mechanism for a pulse width 180 fs, 1 ps, 4 ps. (d)-(f) The mean electron temperature.

4-4-9　大気への損失エネルギー

大気のレーザ電離やプラズマへの逆制動放射により、レーザはエネルギーを損失する。集光の前後でエネルギーを計測することにより、集光時のエネルギー損失量を計測することができる。また、数値計算ではレーザ電離量とプラズマへの逆制動放射量を計算しているため、損失エネルギーを算出することができる。これらの結果を Fig. 4.14(a),(b)に示す。

実験的なパルスエネルギー計測では、使用したパワーメータの精度に起因するエラーを考慮した。エネルギー損失は 180 fs 条件で 0.02 mJ、1 ps 条件で 0.01 mJ、4 ps 条件では損失は計測されなかった。一方、数値計算によるエネルギー損失量は、180 fs 条件で約 0.02 mJ、1 ps 条件で約 0.003 mJ、4 ps 条件で損失は 0.001 mJ 未満であった。これらの結果は実験結果とエラーバーの範囲内で定量的に一致し、数値計算の信頼性が確認された。いずれの条件においてもエネルギー損失はわずかであ

り、集光時のフルエンス分布に与える影響は小さく、加工への影響も限定的であることが示された。



(a) The experimental results.　　(b) The numerical calculation results.

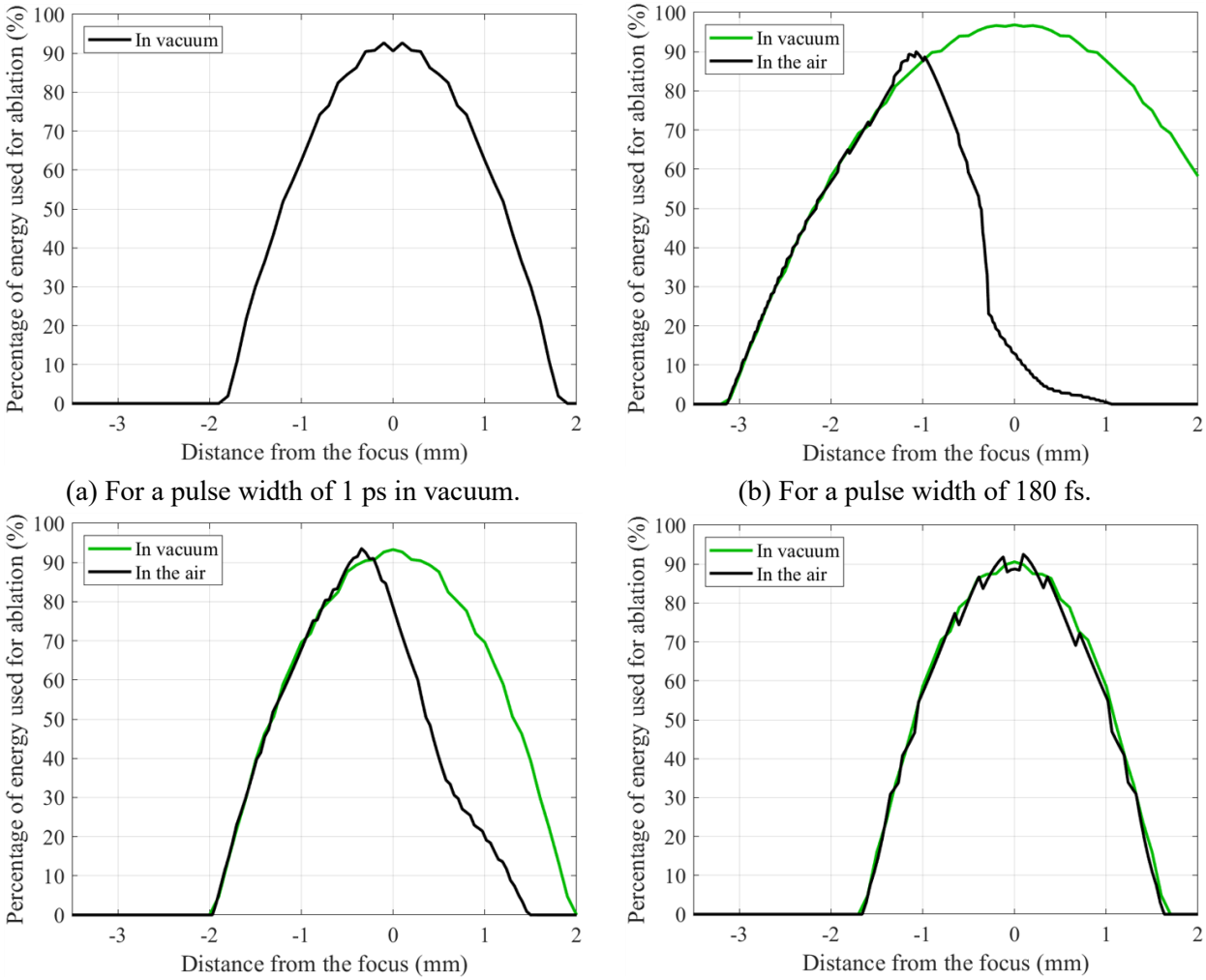
Fig. 4.14 Laser pulse energy loss due to laser focusing.

4-5　考察

4-5-1　レーザ照射位置制御の指針

超短パルスレーザ加工において、アブレーションのエネルギー効率は重要な指標である。また、第 3 章で示したように、アブレーション深さはピーニングにおいても重要であり、アブレーションのエネルギー効率が最大となる位置での照射が有効であると考えられる。非線形伝搬計算により得られるフルエンス分布において、Fig. 4.8 で求めたアブレーションのフルエンス閾値を超える領域の総エネルギーを求めることで、アブレーションのエネルギー効率を算出することが可能である。Fig. 4.15(a)-(d)に、真空条件におけるパルス幅 1 ps 条件、大気条件におけるパルス幅 180 fs、1 ps、4 ps の各条件でのアブレーション効率の算出結果を示す。大気条件においては、理想的な集光時のアブレーション効率を緑線で示す。

真空条件では焦点位置で最もアブレーション効率が高い。しかし、パルス幅 180 fs の焦点位置ではアブレーション効率が 10%にとどまるため、焦点位置での加工は適切でないことが示される。線形伝搬領域において上流 1.1 mm ではアブレーション効率が低下するが、非線形伝搬領域においてアブレーション効率が最大である。したがって、上流側での超短パルスレーザ加工が適切であることが示される。パルス幅 1 ps 条件では、上流 0.4 mm において最大のアブレーション効率が得られるが、この効率は理想的な集光時に比べて低下しない。そのため、パルス幅 1 ps 条件では非線形光学現象の影響を受けつつも、適切な照射位置の制御により加工効率を維持できると考えられる。この結果から、ドライレーザピーニングにおいてパルス幅 1 ps が適切であったことが理解できる。一方、パルス幅 4 ps 条件では非線形光学現象の影響が小さく、アブレーション効率の変化はほとんど見られない。そのため、パルス幅 4 ps 条件では上流側への照射位置制御を必要としない可能性がある。これらの知見を基に、大気の非線形光学現象の影響を受ける超短パルスレーザの加工位置を機械的に制御することが可能であると結論できる。



(a) For a pulse width of 1 ps in vacuum.

(b) For a pulse width of 180 fs.

(c) For a pulse width of 1 ps.

(d) For a pulse width of 4 ps.

Fig. 4.15 Energy efficiency used for ablation for each pulse width.

4-5-2　ドライレーザピーニングのレーザ照射パラメータ依存性

レーザピーニングは多くのレーザパラメータに依存する現象である。具体的には、レーザピーニング時に設定できるパラメータはパルスエネルギー、パルス幅、集光条件、照射位置、照射間隔の 5 つである。金属のアブレーション時に影響するパラメータには、レーザのフルエンス分布、パルス幅、レーザ強度分布、照射径（アブレーション径）が含まれる。また、ピーニングにおいては、アブレーション径に応じたカバレージ、単位面積あたりの合計入力エネルギー（アブレーションに使用された合計エネルギー）も考慮する必要がある。これらの入力パラメータに対して、アブレーション深さやアブレーション径、圧縮残留応力分布や硬化領域などの出力が得られる。

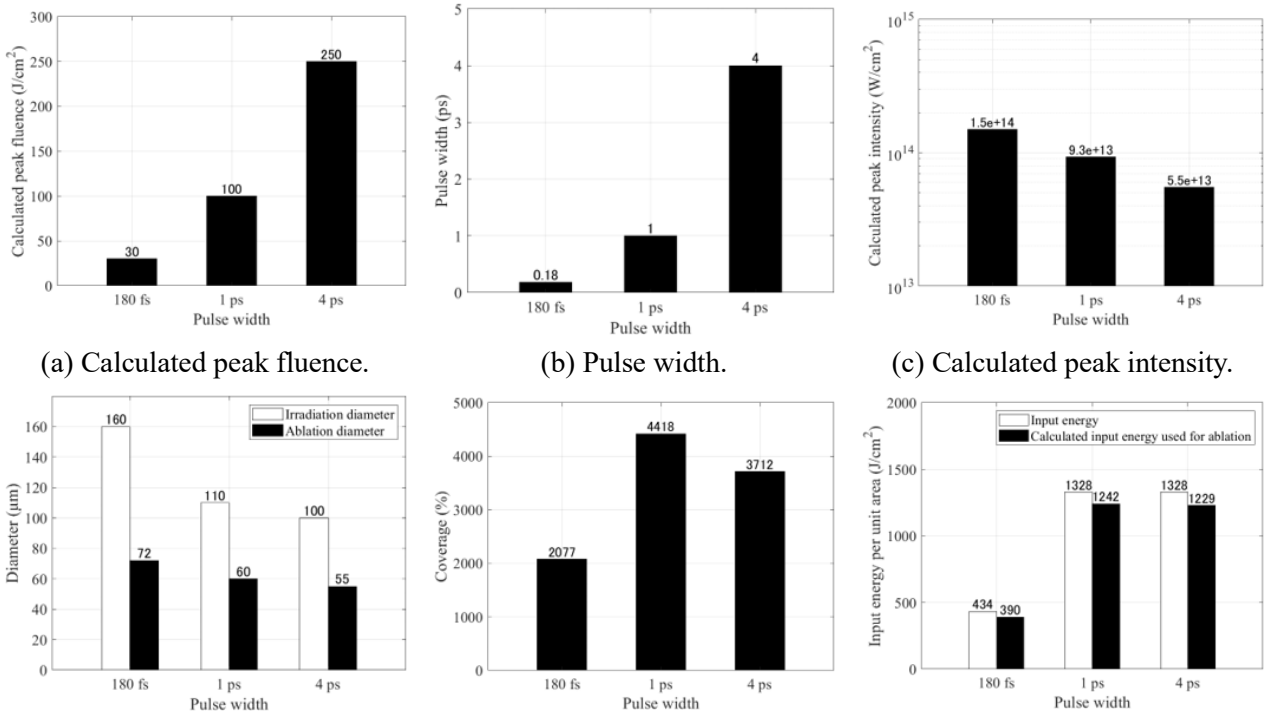
このように、多くのパラメータが複雑に相関する場合、単一のパラメータ変化から加工結果を予測することは困難である。例えば、パルス幅を変化させた場合、線形集光の場合、変化する入力パラメータはパルス幅とレーザ強度分布のみである。しかし、非線形集光の場合、これらに加えて、フルエンス分布や照射径が変化し、それに伴ってカバレージを一定に保つ場合には単位面積あたりの合計入力エネルギーも変化する。つまり、一つのパラメータ変化が複数の入力パラメータを同時に変動させるため、パルス幅依存性は一つの因果関係を変動させるものではなく、複数の因果関係に影響を及ぼすものである。

第 3 章で行ったドライレーザピーニングの実験結果から、圧縮残留応力分布におけるパルス幅依存性が明らかとなり、パルス幅 1 ps が最適である実験結果となった。この結果は、Fig. 4.16 に示される多くのパラメータが関与した結果であり、フルエンスの大小やパルス幅の大小だけで因果関係を説明することはできない。先行研究からは、フルエンスの大きな条件ではピーニング加工結果が良好であることが示されており、フルエンスの増加はピーニングに貢献すると考える。本実験条件ではアブレーション深さが変化するため、カバレージの統一は意味を持たない。なお、本実験でカバレージが変化したのは実験上のエラーによるものであることを注記する。アブレーション径の差はわずかであるから、これが実験結果に与える影響は小さいと考えられる。また、レーザ強度はフルエンスとパルス幅の両者から決まるパラメータであるから、ここでは無視する。以上の観点から、ピーニング結果のパルス幅依存性は最大フルエンス、パルス幅、単位面積あたりの合計入力エネルギーに関連していると考えられる。

パルス幅 1 ps と 4 ps を比較すると、単位面積あたりの合計入力エネルギーが同程度であり、パルス幅 4 ps 条件ではフルエンスが高いにも関わらずピーニング品質が低下する。この結果は、熱影響が数ピコ秒から増加し始める物理現象の知見に一致し、妥当な結果と言える。すなわち、パルス幅は短い条件が適切である。

パルス幅 180 fs と 1 ps を比較すると、パルス幅 180 fs 条件ではフルエンスが小さく、単位面積あたりの合計入力エネルギーも小さい。そのため、1 ps と比較した 180 fs のピーニング品質の低下については、フルエンスの低下と単位面積あたりの入力エネルギーの低下のどちらが原因かを特定することはできない。本実験条件と同様の条件で、かつカバレージが統一されているアルミニウム合金に対するピーニング研究[33]でも同様の傾向が観察されているため、本実験ではフルエンスの低下および単位面積あたりの合計入力エネルギーの低下の両者が影響したと結論づけられる。

本実験条件に基づいて得られた最適なピーニング加工の指針として、以下の二つが挙げられる。一つ目は、照射時のフルエンスが同程度である場合において、ピコ秒未満のパルス幅条件は熱影響を抑制する上で重要である。二つ目は、高いフルエンスや単位面積あたりの合計入力エネルギーはピーニングに有効である。ただし、これらの条件の具体的な上限についてはまだ確認できていない。



(a) Calculated peak fluence.

(b) Pulse width.

(c) Calculated peak intensity.

(d) Irradiation diameter and ablation diameter.

(e) Coverage.

(f) Input energy and calculated input energy used for ablation per unit area.

Fig. 4.16 Pulse width dependence of process parameters affecting the peening process.

以上のように、一つのレーザ条件設定の変更は多くのパラメータ変化を誘発するため、すべての因果関係を特定することは不可能であり、加工結果の予測には至らない。他にも特定のパラメータを統一した条件下での実験を行い、複雑に相互作用するパラメータの影響を適切に評価することが重要である。特に、大気の非線形光学現象はピーニング加工の物理現象をさらに複雑化しており、ピーニング加工そのものの理解のためには、これらの現象を無視できる条件での実験を行うべきである。そのような実験によって、加工結果の安定性や品質向上に向けた洞察が得られ、効果的なピーニング加工の実現に寄与することが期待できる。

4-5-3　大気の非線形光学現象のパラメータ化によるレーザ発散時レーザ強度の推定

本計算条件において、超短パルスレーザ集光特性に最も影響を与える大気の非線形光学現象は、光カー効果ではなく、大気の電離によるプラズマデフォーカスであることが示された。さらに、衝突電離は主にパルスレーザ通過後に生じるため、パルスレーザ発散への影響が小さいと予測される。レーザ集光時のフルエンス分布において、最も強度の高いパルス中心の集光特性が重要であるため、パルス中心が最も集光する位置に到達した際のレーザ電離量と衝突電離量を算出することで、レーザ発散に及ぼす衝突電離の影響力を見積もることができる。Fig. 4.17 に、パルス幅 180 fs、1 ps、4 ps において、パルス中心が最も集光する位置に到達した際のレーザ電離量と全電離量の割合を示す。

パルス幅 180 fs 条件では、衝突電離は 0.001%程度しか生じないため、99.999%がレーザ電離によるものである。パルス幅 1 ps 条件では、レーザ電離量の割合が 92.59%、4 ps 条件では 90.56%であ

った。ピコ秒パルス条件では衝突電離が顕著である一方、それらは主にパルスレーザ通過後に生じるために、パルス中心のレーザ発散への寄与は 10%未満であることが示された。したがって、レーザ発散現象においては、レーザ電離が支配的な非線形光学現象であると考えられる。

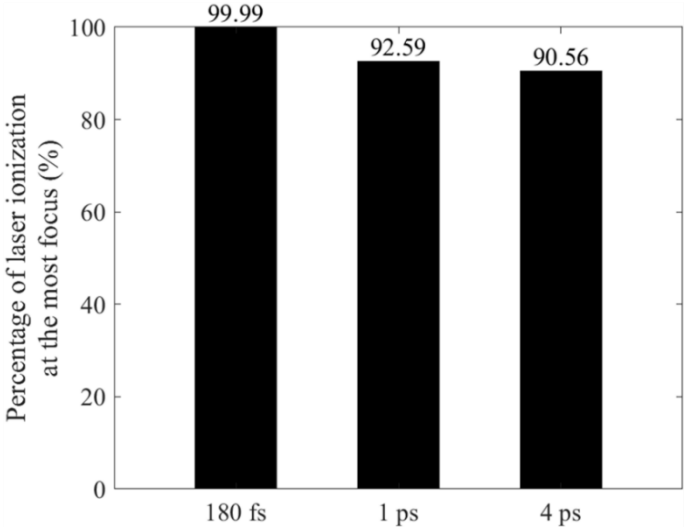


Fig. 4.17 Percentage of laser ionization to total ionization at the most focused for each pulse width.

光カー効果はレーザフィラメンテーション分野では大きな影響を及ぼす非線形光学現象である。超短パルスレーザ加工のような集光の強い条件では、その影響力は小さいことが先行研究や本実験から示される。非線形ファイバー光学分野においては、分散項と非線形項の係数を取り、ファイバーの長さに対して分散や非線形光学効果の影響力を比較できることが知られている。レーザフィラメンテーション分野では、光カー効果とプラズマによる屈折率の変化量が同等になる際に Intensity clamping が生じることが提案されているが、パルス幅や開口数に応じたこれらの影響力を見積もることはできていない。以上のことから、支配的な非線形光学現象が切り替わる開口数やレーザ強度の閾値を考案することは有意義である。

非線形ファイバー光学のパラメータ選択に習い、単位伝搬長さあたりの位相変化量を与える[34]。光カー効果による自己集束およびプラズマによるデフォーカシングのみを取り出した方程式は次の通りである。

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = i\frac{k_0}{n_0}n_2 I\mathcal{E} \tag{4.95}$$

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = -i\frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{2}\omega_0\tau_c\rho\mathcal{E} \tag{4.96}$$

これらは単純に解くことにより、

$$\mathcal{E}(\xi+\Delta\xi) = \mathcal{E}(\xi)exp\left(i\frac{k_0}{n_0}n_2 I\Delta\xi\right) \tag{4.97}$$

$$\mathcal{E}(\xi+\Delta\xi) = \mathcal{E}(\xi)exp\left(-i\frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{2}\omega_0\tau_c\rho\Delta\xi\right) \tag{4.98}$$

これらから、単位伝搬長さあたりの位相変化量をそれぞれ次のように定義できる。

$$L_{Kerr} = \frac{k_0}{n_0} n_2 I \tag{4.97}$$

$$L_{plasma} = -\frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{2} \omega_0 \tau_c \rho \tag{4.98}$$

正の位相変化は−ξ方向への平行移動を意味し、波面を遅らせる。一方、負の位相変化はξ方向への平行移動を意味し、波面を進める。ガウシアンレーザの場合、中心の強度が高いため、カー効果は中心の波面を遅らせ、一方、プラズマは中心の波面を進めるように作用する。単位伝搬長さあたりの位相変化量の符号が異なることから、これらの非線形光学効果は競合するものである。レーザフィラメンテーションの議論ではこれらの比較を行うことができるが、超短パルスレーザ加工では開口数の影響も考慮して議論する必要がある。開口数は伝搬計算において、回折項に関係するものであるから、

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = \frac{i}{2k_0} \Delta_\perp \mathcal{E} \tag{4.99}$$

ただし、(4.99)式に開口数の情報は含まれない。開口数は$\mathcal{E}$の初期条件に含まれるものであり、非線形伝搬方程式の項から単位伝搬長さあたりの位相変化量は定義することはできない。レンズによるレーザ集光時の電場振幅の初期条件は、レンズによる位相変化量を加えたものであるため、ビーム中心と半径r位置との位相差は、

$$\mathcal{E}_0 = \mathcal{E}_0 exp\left(-ik_0 \frac{r^2}{2f}\right) \tag{4.100}$$

ビーム中心を基準に、半径r位置が負の位相変化を生じることを表し、半径が大きい位置ほど波面が進んだ負の曲率半径を持つ。線形伝搬領域では、およそレンズの焦点位置で曲率半径が無限大、すなわち平面波となることから、焦点距離の間にビーム中心の位相が半径r位置の位相に追いつくために合計$-ik_0 \frac{r^2}{2f}$だけ変化する。線形に位相が変化すると近似すると、レンズによる位相項をレンズ焦点距離で割ったものとして単位伝搬長さあたりの位相変化量を定義でき、

$$L_{diffraction} = -k_0 \frac{r^2}{2f^2} \tag{4.101}$$

以上より、回折、光カー効果、プラズマによる単位伝搬長さあたりの位相変化量を定義した。回折とプラズマは波面の位相を同じ方向に変化させるものである。さまざまな開口数、エネルギー、パルス幅に応じて、単位伝搬長さあたりの位相変化量の大きさを求めることで、支配的な非線形光学効果を見積もることができる。

回折による単位伝搬長さあたりの位相変化量はレンズ焦点距離から求められる。光カー効果による単位伝搬長さあたりの位相変化量はレーザ強度から求められ、プラズマによる単位伝搬長さあたりの位相変化量は電子密度から求められる。超短パルスレーザ集光特性変化においては、パルス中心のレーザ発散が重要である。パルス中心はレーザ強度が最も高いため、光カー効果の影響力を大きく見積もることができる。また、パルス中心に到達するときのプラズマ密度を求めることで、プラズマの影響力を見積もることができる。パルス中心のレーザ発散に関与するプラズマはレーザ電

離によるものであるため、衝突電離は無視してよい。そこで、パルス中心のレーザ強度を横軸に取り、発散を考慮せずにパルス前半部分のレーザ電離によるプラズマ密度を求める。

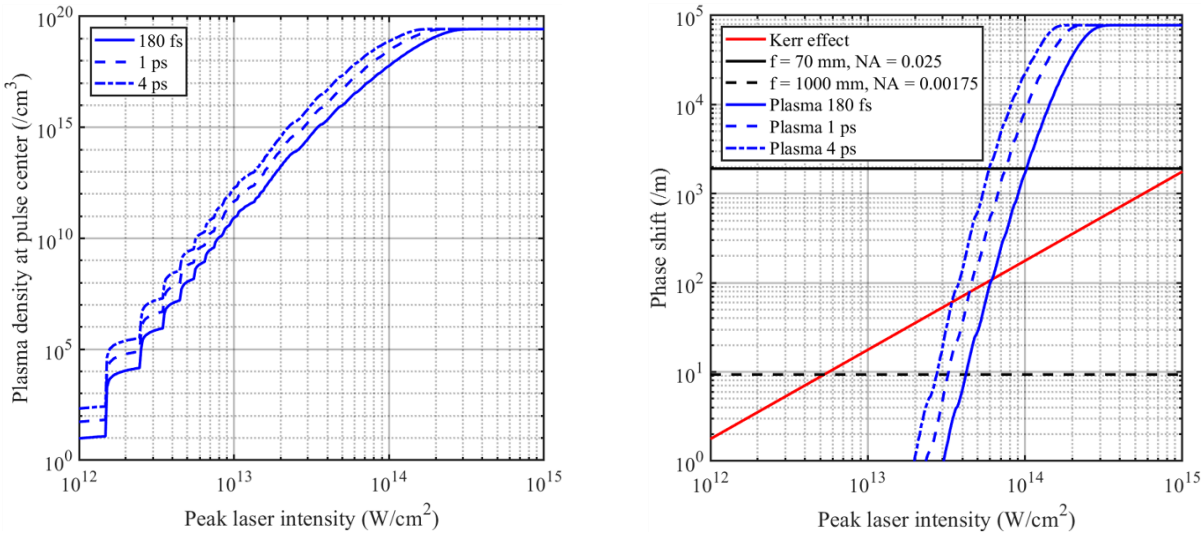
Fig. 4.18(a)に、パルス幅ごとにピーク強度に対応するプラズマ密度を示す。ピーク強度が同じ場合、パルス幅が長い条件の方がプラズマ生成量は大きい。ここでは一価の電離のみを考えるため、レーザ強度が 2×10^{14} W/cm^2 でプラズマ密度は飽和する。このレーザ強度とプラズマ密度を用いて、単位伝搬長さあたりの位相変化量を算出した結果を Fig. 4.18(b)に示す。開口数は 2 種類用いて比較する。

レーザフィラメンテーション分野のような低 NA 条件では、レーザ強度が 10^{13} W/cm^2 以上で光カー効果の位相変化量が回折による位相変化量を上回る。さらに、5×10^{13} W/cm^2 までに光カー効果とプラズマによる位相変化量が同等となるため、Intensity clamping として知られるように、レーザ強度はそれ以上高まらない。一方、超短パルスレーザ加工のような高 NA 条件では、回折による位相変化量が非常に大きいため、非線形光学効果の影響を受け始めるレーザ強度は低 NA 条件よりも高くなる。光カー効果はレーザ強度に対して線形に変化するため、回折の位相変化量よりも大きくなるにはレーザ強度 10^{15} W/cm^2 が必要である。

プラズマ生成は、電離率がレーザ強度に応じて指数関数的に増加するため、レーザ強度の増加に伴って位相変化量も急速に増加する。この結果、光カー効果よりも先にプラズマによる位相変化量が回折による位相変化量を上回り、支配的な非線形光学現象となる。同程度の位相変化量に至るレーザ強度はパルス幅に依存し、パルス幅 180 fs では 1.0×10^{14} W/cm^2、1 ps では 7.5×10^{13} W/cm^2、4 ps では 6.0×10^{13} W/cm^2 である。回折とプラズマデフォーカシングは同じ作用を持つため、このレーザ強度で飽和を生じることはないが、両者が同程度の影響力でレーザ中心の波面を進めることを示している。

プラズマによる位相変化量はレーザ強度がさらに 2 倍になることで、その位相変化量は回折の位相変化量の約 10 倍に上昇する。これは、焦点位置まで残り 1.0 mm であった場合、わずか 0.1 mm の伝搬で光を発散に転じることのできる強さを意味するため、レーザ発散が顕著に生じると考えられる。飽和レーザ強度については、4-5-4 節で考察する。実際の非線形伝搬計算において、パルス幅 180 fs では 1.5×10^{14} W/cm^2、1 ps では 9.3×10^{13} W/cm^2、4 ps では 5.5×10^{13} W/cm^2 の飽和レーザ強度が得られることが示された。また、パルス幅の増加に対して飽和レーザ強度の低下は抑制されているため、パルス幅が長い条件では、より高いフルエンスを得られることが示される。これらの結果は実験結果や計算結果と整合している。

以上のことから、超短パルスレーザ集光時の飽和レーザ強度やフルエンス分布などの集光特性は、開口数とパルス幅に依存することが明らかとなった。非線形伝搬計算を行わずに、NA とパルス幅から集光時の飽和レーザ強度を見積もることが可能である。ただし、プラズマが飽和する位相変化量よりも大きな位相変化を持つ NA＞0.1 の条件では、プラズマデフォーカスの影響よりも集光が支配的であるため、飽和強度を正確に推定することは難しいことに留意する必要がある。開口数が大きな条件については第 6 章にて検討する。



(a) The amount of plasma generated in relation to the peak laser intensity for each pulse width.

(b) The phase change per unit length for each pulse width.

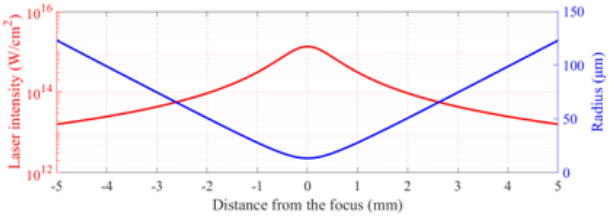
Fig. 4.18 Relation between phase change parameter of diffraction, phase change parameter of Kerr effect, and phase change parameter of plasma.

4-5-4　大気の非線形光学現象のパラメータ化によるレーザ発散位置の推定

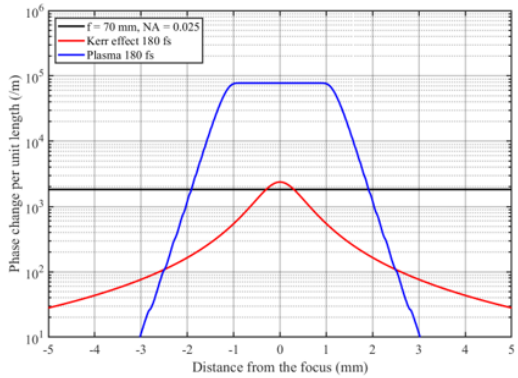
4-5-3 の位相変化量パラメータをガウシアンレーザの線形集光時の強度分布上で比較することで、レーザ発散を開始する位置の予測が可能である。パルス幅 180 fs、1 ps、4 ps 条件の線形集光時の強度分布を Fig. 4.19(a)-(c)に、レーザ強度に対応するプラズマ密度を算出し、位相変化量パラメータに変換した結果を Fig. 4.19(d)-(f)に示す。レーザ集光過程で回折による位相変化量パラメータとプラズマ散乱による位相変化量パラメータの交点が生じる条件では、レーザ発散が開始する位置を算出することができる。パルス幅 180 fs 条件では上流 2.0 mm、パルス幅 1 ps 条件では上流 0.9 mm、パルス幅 4 ps 条件では上流 0.1 mm である。これらの位置で、レーザ中心部の強度分布は非線形な変化が顕著に生じ始めると言える。

また、レーザ集光とは、集光レンズによって付与された位相差が回折現象によってゼロとなる現象であることから、上流側で残存する位相差を、線形集光を仮定した回折と光カー効果とプラズマ散乱によって減少させる過程を考える。ビーム半径位置とビーム半径の 2 倍の位置の位相差を積算した結果をそれぞれ、Fig. 4.20(a)-(c)、Fig. 4.20(d)-(f)に示す。回折のみを考慮した残存位相差は直線となり、焦点位置でゼロとなる。回折と光カー効果を考慮した残存位相差は、上流側でほとんど変化せず、光カー効果の寄与が小さいことを表す。焦点位置付近で光カー効果の影響が大きいことが算出されるが、実際には上流側でレーザは発散するため、意味を持たないグラフである。回折とプラズマ散乱を考慮した残存位相差は、上流側で顕著な変化が生じる。変化が生じ始めるレーザ強度や集光軸での位置は、Fig. 4.18(b)と Fig. 4.19(d)-(f)に一致する。プラズマ散乱により残存位相差がゼロとなり、レーザ発散が表現されている。ビーム半径位置のレーザ発散位置は Fig. 4.19(d)-(f)の位置よりも後方となり、パルス幅 180 fs 条件では上流 1.5 mm、パルス幅 1 ps 条件では上流 0.6 mm、パルス幅 4 ps 条件では上流 0.1 mm である。この位置では、パルスエネルギーの大部分を占めるレーザ中心部分の発散が進み、最大レーザ強度が低下し始めると考えられる。非線形伝搬計算により算

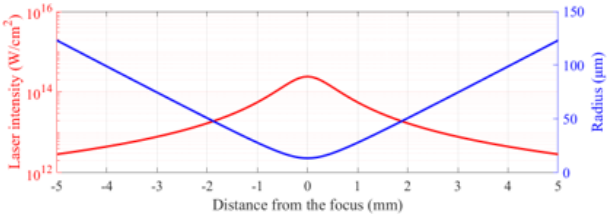
出されたフルエンス分布である Fig. 4.7 もおよそこれらの位置で非線形な変化が生じており、現象を良く記述できている。この位置での線形集光時のレーザ強度はパルス幅 180 fs 条件では 1.6×10^{14} W/cm^2、パルス幅 1 ps 条件では 1.1×10^{14} W/cm^2、パルス幅 4 ps 条件では 5.9×10^{13} W/cm^2 であり、飽和レーザ強度の推定に用いることができる。また、ビーム半径の 2 倍の位置のレーザ発散位置はパルス幅 180 fs 条件では上流 1.25 mm、パルス幅 1 ps 条件では上流 0.4 mm、パルス幅 4 ps 条件では焦点位置の直上である。この位置では、パルス中心の外周部も含めて、レーザ発散に転じることを表すと考えられる。非線形伝搬計算により算出されたフルエンス分布である Fig. 4.7 もおよそこれらの位置でレーザ発散が生じており、現象を良く記述できている。このように、非線形伝搬計算なしに飽和レーザ強度やレーザ発散位置の予測が可能である。また、これらは線形現象と非線形現象の境界を提示できる知見となりうる。このような考察は、参考文献[35]で報告された光路差を考慮した回折と光カー効果とプラズマ散乱の影響力を比較した方法と類似しているが、[35]はフィラメンテーション分野の開口数範囲での考察であること、多光子吸収電離のみを扱うこと、その場における屈折率と光路差で比較を行っていることから、本手法の方がより汎用的で発散位置の推定まで行える点で有意義であると考えられる。



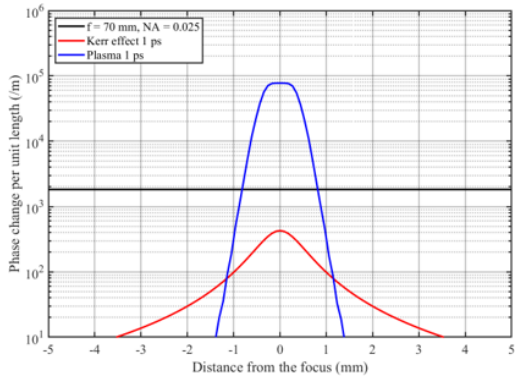
(a) 180 fs.



(d) 180 fs.

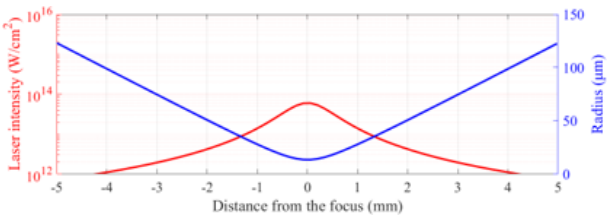


(b) 1 ps.

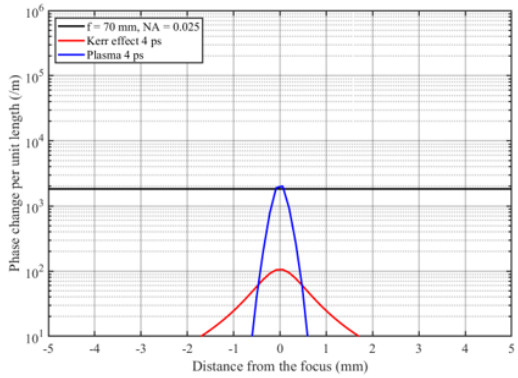


(e) 1 ps.

Fig. 4.19 (a)-(c) Intensity distribution at linear Gaussian focusing for each pulse width. (d)-(f) Relation between phase change parameter of diffraction, phase change parameter of Kerr effect, and phase change parameter of plasma calculated from the intensity distribution at linear Gaussian focusing for each pulse width.

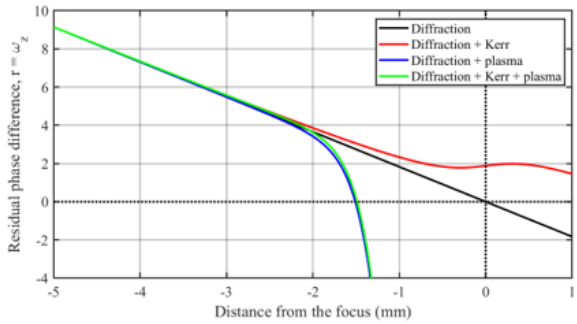


(c) 4 ps.

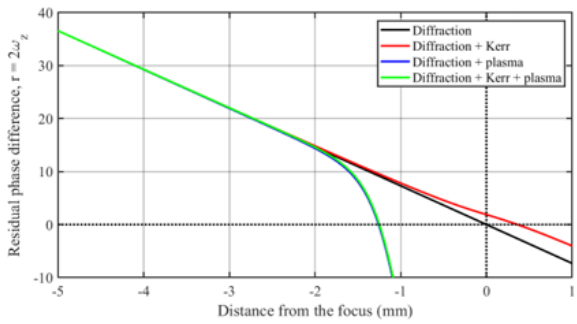


(f) 4 ps.

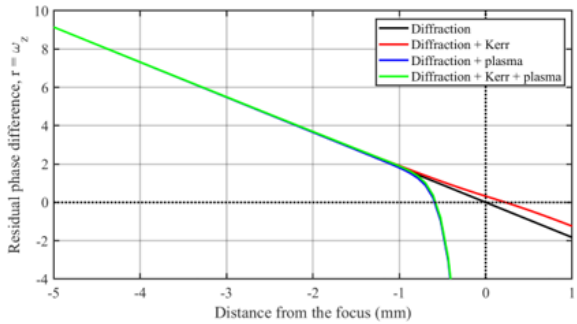
Fig. 4.19 Continued.



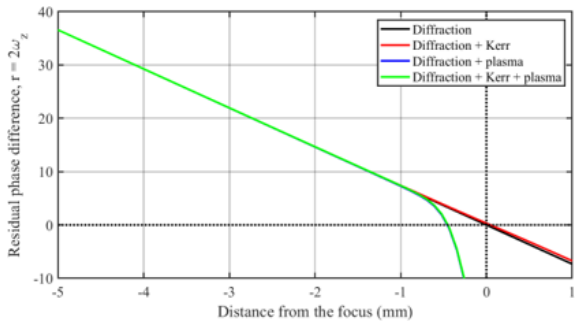
(a) 180 fs.



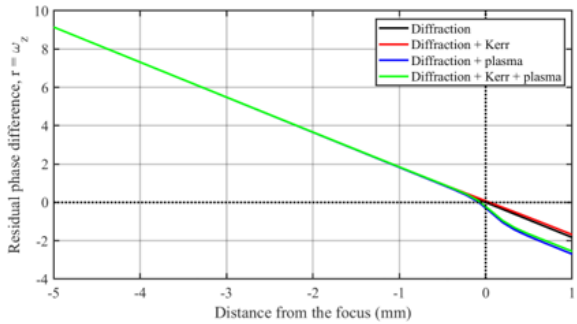
(d) 180 fs.



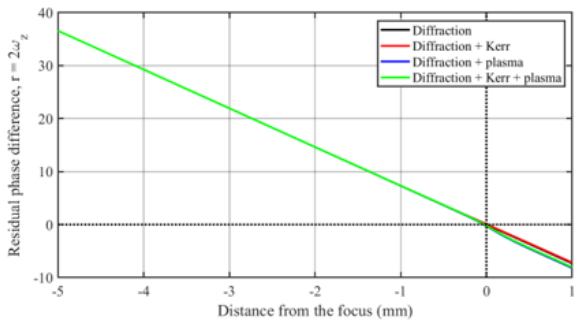
(b) 1 ps.



(e) 1 ps.



(c) 4 ps.



(f) 4 ps.

Fig. 4.20 (a)-(c) Residual phase difference at each position of the laser focus axis, taking into account diffraction, optical Kerr effect, and plasma defocusing at the beam radius position for each pulse width. (d)-(f) Residual phase difference at each position of the laser focus axis, taking into account diffraction, optical Kerr effect, and plasma defocusing at twice the beam radius position for each pulse width.

4-6　結言

本章では、大気の電離閾値を超える強度、フルエンスのフェムト秒からピコ秒領域におけるレーザ集光特性に及ぼす大気の非線形光学現象の影響に関する研究を行い、以下の結果を得た。

1. レーザ集光に伴い、自己位相変調による周波数スペクトルの変化が観察された。変化は主にブルーシフトであり、ブルーシフト成分は径方向の外側に広がることが示された。これより、レーザ集光特性変化に支配的な非線形光学現象は、屈折率を低下させる大気の電離であることが示唆された。同一パルスエネルギー条件では、パルス幅の短い条件ほど周波数スペクトルの変化量が大きく、また焦点距離の短い条件の方が大きく変化することが示された。
2. 大気の非線形光学現象を考慮したレーザ伝搬計算により、周波数スペクトル計測結果と同様に、外周部へのブルーシフトが再現された。パルス幅が短い条件ほどブルーシフト量が大きく、大気プラズマ生成の影響を強く受けることが示された。
3. 大気プラズマ生成の影響を受けるレーザ集光特性は線形伝搬時とは異なり、上流側でのレーザ発散やレーザ強度分布に変化が生じた。パルス幅の長い条件ではプラズマ生成量が小さく、集光特性変化が小さいことが示された。
4. パルス幅の短いフェムト秒パルス条件では、レーザ発散が顕著であり、集光時の最大フルエンスは線形集光時の最大フルエンスの 10%まで低下した。パルス幅の長いピコ秒パルス条件ではレーザ発散を抑制できるため、最大フルエンスを高く保ち照射することが可能である。数値計算によって得られたフルエンス分布は、実験結果の照射領域推移やアブレーション領域推移と良く一致した。
5. 本実験条件のように高強度に達するレーザ集光条件では、光カー効果の影響は小さい。レーザ発散位置後方でのレーザ中心のフルエンスの高まりは、プラズマ蓄積が不十分なパルス内時間の前半部分の集光によるものであり、光カー効果の影響は無視できた。パルス内の時間が経過するにつれプラズマが蓄積し、パルスの後半が最もレーザ発散の影響を受けることが示された。そのため、レーザ集光位置（発散位置）はパルス後方の成分によって決定された。
6. レーザ集光に伴うプラズマ生成量や分布はパルス幅に依存するが、計算された最大プラズマ密度はパルス幅によらず大気の 10%程度であった。基本的に酸素分子のレーザ電離が支配的であり、窒素分子のレーザ電離は高強度条件でのみ生じた。フェムト秒パルスでは逆制動放射による電子エネルギーの上昇が不十分であるため衝突電離は生じず、ピコ秒パルスでは電子エネルギーが窒素分子のイオン化エネルギーを超えるため、衝突電離量が増加した。衝突電離量は窒素分子の方が多く、パルス幅が長くなるほど窒素イオンの割合が増加した。衝突電離は 1-2 ps 後に生じるため、パルスの伝搬への影響は小さい。パルス中心のレーザ発散への影響は、フェムト秒パルスでは 99.9%以上、数ピコ秒パルスでも 90%程度がレーザ電離によるものであることが示唆された。
7. パルスエネルギーは大気のレーザ電離と大気プラズマへの逆制動放射によりエネルギーを失い、実験結果と計算結果のエネルギー損失の値は良く一致した。レーザ集光に伴うエネルギー損失はわずかであり、レーザ加工に影響を及ぼさないことが示された。
8. レーザアブレーション加工やレーザピーニング加工において、アブレーションのエネルギー効率は重要である。レーザ発散が顕著なフェムト秒パルス条件では、焦点位置よりも上流側での

照射位置制御が必要不可欠である。しかしながら、レーザ発散が顕著な条件では、照射位置制御を行ってもアブレーション効率は顕著に低下するため、加工に不適切である。レーザ発散が弱い条件では、アブレーション効率が低下しない場合があり、照射位置制御により効率的な加工を行うことができる。結果として、パルス幅を長くすることで良好なアブレーション加工やピーニング加工が可能となる場合がある。高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工においては、必要なレーザ強度やフルエンスに応じて、適切なパルス幅を選択する必要がある。

9. 回折や大気の非線形光学現象の単位伝搬長さあたりの位相変化量を定義することにより、非線形伝搬計算なしにレーザ発散時のレーザ強度やフルエンスなどの集光特性を見積もることができた。開口数に応じて支配的な非線形光学現象や飽和レーザ強度が異なることを示した。また、パルス幅が短い条件では飽和レーザ強度は高いが、フルエンスは低下することが示された。
10. 集光レンズによって与えられる位相差を、単位伝搬長さあたりの位相変化量を用いて減少する過程を考えることで、レーザ発散が開始する位置やレーザ発散が完了する位置、飽和レーザ強度の推定が可能であることが示された。これらは大気の電離閾値を超える強度、フルエンス領域の超短パルスレーザ加工におけるレーザパラメータ選定に貢献する。

参考文献

[1] J. Kerr, “A new relation between electricity and light: Dielectrified media birefringent”, Phil. Mag. S. 4, Vol. 50, No. 332, pp. 337-348 (1875).

[2] S. Zahedpour, J. K. Wahlstrand, and H. M. Milchberg, “Measurement of the nonlinear refractive index of air constituents at mid-infrared wavelemngths”, Opt. Exp., Vol. 40, No. 24, pp. 5794-5797 (2015).

[3] A. Couairon, E. Brambilla, T. Corti, D. Majus, O. de J. Ramirez-Góngora, and M. Kolesik, “Practitioner’s guide to laser pulse propagation models and simulation”, Eur. Phys. J. Special Topics, Vol. 195, pp. 5-76 (2011).

[4] H. B. Bebb and A. Gold. “Multiphoton ionization of hydrogen and rare-gas atoms”, Phys. Rev., Vol. 143, No. 1, pp. 1-24 (1966).

[5] S. L. Chin, N. R. Isenor, and M. Young, “Multiphoton ionization of Hg and Xe”, Phys. Rev., Vol. 188, No. 1, pp. 7-8 (1969).

[6] Gy. Farkas, and S. L. Chin, “Experiment on the optical tunneling process of electrons from a gold surface induced by mode-locked CO2 laser pulse trains”, Applied Physics B, Vol. 37(1985), pp. 141-143

[7] X. Zhao, and Y. C. Shin, “Femtosecond laser ablation of aluminum in vacuum and air at high laser intensity,” Appl. Sur. Sci., Vol. 283, pp. 94-99 (2013).

[8] C. Pasquier, P. Brandin, R. Clady, N. Sanner, M. Sentis, O. Utéza, Yu. Li, and S. Y. Long, “Handling beam propagation in air for nearly 10-fs laser damage experiments,” Opt. Commun., Vol. 355, pp. 230-238 (2015).

[9] C. Pasquier, M. Sentis, O. Utéza, and N. Sanner, “Predictable surface ablation of dielectrics with few-cycle laser pulse even beyond air ionization,” Appl. Phys. Lett., Vol. 109, No. 051102 (2016).

[10] A. Couairon, E. Brambilla, T. Corti, D. Majus, O. de J. Ramirez-Góngora, and M. Kolesik, “Practitioner’s guide to laser pulse propagation models and simulation,” Eur. Phys. J., Vol. 199, pp. 5-76 (2011).

[11] M. Kolesik, and J. V. Moloner, “Modeling and simulation techniques in extreme nonlinear optics of gaseous and condensed media,” Rep. Prog. Phys., Vol. 77, No. 016401 (2014).

[12] L. V. Keldysh, “Ionization in the field of a strong electromagnetic wave,” Sov. Phys. JETP, Vol. 20, No. 5, pp. 1307-1314 (1965).

[13] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent’ev, “Ionization of atoms in an alternating electric field,” Sov. Phys. JETP, Vol. 23, No. 5, pp. 924-934 (1966).

[14] S. L. Chin, S. A. Hosseini, W. Liu, Q. Luo, F. Théberge, N. Aközbek, A. Becker, V. P. Lamdodpv, O. G. Kosareva, and H. Shroeder, “The propagation of powerful femtosecond laser pulses in optical media: physics, applications, and new challenges,” Can. J. Phys., Vol. 83, pp. 863-905 (2005).

[15] L. Bergé, S. Skupin, R. Nuter, J. Kasparian, and J-P Wolf, “Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media,” Rep. Prog. Phys., Vol. 70, pp. 1633-1713 (2007).

[16] A. Couairon, and A. Mysyrowicz, “Femtosecond filamentation in transparent media,” Phys. Rep., Vol. 441, pp. 47-189 (2007).

[17] S. L. Chin, T. -J. Wang, C. Marceau, J. Wu, J. S. Liu, O. Kosareva, N. Panov, Y. P. Chen, J. -F. Daigle, S. Yuan, A. Azarm, W. W. Liu, T. Seideman, H. P. Zeng, M. Richardsono, R. Li and Z. Z. Xu, “Advances in intense femtosecond laser filamentation in air,” Laser Phys., Vol. 22, No. 1, pp. 1-53 (2011).

[18] F. Théberge, W. Liu, P. Tr. Simard, A. Becker, and S. L. Chin, “Plasma density inside a femtosecond laser

filament in air: strong dependence on external focusing," Phys. Rev. E, Vol. 74, No. 036406 (2006).

[19] Y. T. Li, T. T. Xi, Z. Q. Hao, Z. Zhang, X. Y. Peng, K. Li, Z. Jin, Z. Y. Zheng, Q. Z. Yu, X. Lu, and J. Zhang, "Oval-like hollow intensity distribution of tightly focused femtosecond laser pulses in air," Opt. Exp., Vol. 15, No. 26, pp. 17973-17979 (2007).

[20] Yu. E. Geints, D. V. Mokrousova, D. V. Pushkarev, G. E. Rizaev, L. V. Seleznev, I. Yu. Geints, A. A. Ionin, and A. A. Zemlyanov, "Energy limit for linear-to-nonlinear femtosecond laser pulse focusing in air," Opt. Laser Technol., Vol. 143, No. 107377 (2021).

[21] A. Schmitt-Sody, H. G. Kurz, L. Bergé, S. Skupin, and P. Polynkin, "Picosecond laser filamentation in air," New J. Phys., Vol. 18, No. 093005 (2016).

[22] J. K. Koga, K. Moribayashi, Y. Fukuda, S. V. Bulanov, A. Sagisaka, K. Ogura, H. Daido, M. Yamagiwa, T. Kimura, T. Fujikawa, M. Ebina, and K. Akihama, "Simulation and experiments of the laser induced breakdown of air for femtosecond to nanosecond order pulses," J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 43, No. 025204 (2010).

[23] J. Sun and J. P. Longtin, "Effects of a gas medium on ultrafast laser beam delivery and materials processing," J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 21, No. 5, pp. 1081-1088 (2004).

[24] S. R. Vatsya, C. Li, and S. K. Nikumb, "Surface profile of material ablated with high-power lasers in ambient air medium," J. Appl. Phys., Vol. 97, No. 034912 (2005).

[25] C. Li, S. R. Vatsya, and S. K. Nikumb, "Effect of plasma on ultrashort pulse laser material processing," J. Laser Appl., Vol. 19, No. 1, pp. 26-31 (2007).

[26] R. Yamada, W. Komatsubara, H. Sakurai, K. Konishi, N. Mio, J. Yumoto, and M. Kuwata-Gonokami, "Simulation of nonlinear propagation of femtosecond laser pulses in air for quantitative prediction of the ablation crater shape," Opt. Exp., Vol. 31, No. 5, pp. 7363-7382 (2023).

[27] H. Liang, P. Krogen, R. Grynko, O. Novak, C-L. Chang, G. J. Stein, D. Weerawarne, B. Shim, F. X. Kärtner, and K-H. Hong, "Three-octave-spanning supercontinuum generation and sub-two-cycle self-compression of mid-infrared filaments in dielectrics", Opt. Lett., Vol. 40, No. 6, pp. 1069-1072 (2015).

[28] O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, C. Y. Chien, and S. L. Chin, "Conical emission from laser-plasma interactions in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air", Opt. Lett., Vol. 22, No. 17, pp. 1332-1334 (1997).

[29] S. Zahedpour, J. K. Wahlstrand, and H. M. Milchberg, "Measurement of the nonlinear refractive index of air constituent at mid-infrared wavelengths," Opt. Lett., Vol. 40, No. 24, pp. 5794-5797 (2015).

[30] E. T. J. Nibbering, G. Grillon, M. A. Franco, B. S. Prade, and A. Mysyrowicz, "Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N_2, and O_2 by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses," J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 14, No. 3, pp. 650-660 (1997).

[31] A. Talebpour, J. Yang, S. L. Chin, "Semi-empirical model for the rate of tunnel ionization of N_2 and O_2 molecule in an intense Ti:sapphire laser pulses," Opt. Commun., Vol. 163, pp. 29-32 (1999).

[32] P. J. Wrzesinski, D. Pestov, V. V. Lozovoy, J. R. Gord, M. Dantus, and S. Roy, "Group-velocity-dispersion measurements of atmospheric and combustion-related gases using an ultrabroadband-laser source," Opt. Exp., Vol. 19, No. 6, pp. 5163-5170 (2011).

[33] M. Yoshida, I. Nishibata, T. Matsuda, Y. Ito, N. Sugita, A. Shiro, T. Shobu, K. Arakawa, A. Hirose, and T.

Sano, “Influence of pulse duration on mechanical properties and dislocation density of dry laser peened aluminum alloy using ultrashort pulsed laser-driven shock wave”, J. Appl. Phys., Vol. 132, No.075101 (2022).

[34] G. P. Agrawal, “Nonlinear fiber optics, sixth edition (chapter 3)”, Academic press, (2019).

[35] K. Lim, M. Durand, M. Baudelet, and M. Richardson, “Transition from linear-to nonlinear-focusing regime in filamentation”, Sci. Rep., Vol. 4, No. 7217, pp. 1-8 (2014).

第 5 章　大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ加工における サブ mJ-数 mJ パルスエネルギー依存性

5-1　緒言

第 3 章および第 4 章では、超短パルスレーザ集光特性および加工特性に及ぼすパルス幅の影響を詳細に調査した。パルス幅をピコ秒単位に伸ばすことは、非線形光学現象を回避する上で効果的であるが、同じフルエンスを照射可能である場合、アブレーション効率や熱影響を考慮するとフェムト秒パルスレーザが望ましい。さらに、高パルスエネルギー条件下でのピーニング結果が優れている先行研究の結果から、サブ mJ から数 mJ の高パルスエネルギーを用いたフェムト秒パルスレーザにおける集光特性やピーニング加工特性を調査することは有意義である[1]。

大気の電離閾値を超えるレーザ強度を持つ超短パルスレーザの集光特性は、大気の非線形光学現象の影響を受けて変化する[2-4]。mJ 級のパルスエネルギーは集光時に大気の電離閾値を遥かに上回るため、著しい集光特性変化が予測される。レーザ照射時のレーザ強度やフルエンス分布は、レーザ加工特性に重大な影響を及ぼすため、これらの集光特性を深く理解することが不可欠である。

第 4 章で示したように、超短パルスレーザ加工分野において、非線形伝搬計算を活用した研究は数が限られている[5-8]。我々の知る限り、mJ 級のパルスエネルギー領域に限定して非線形伝搬計算と加工結果を比較した研究はわずか一つであり、その文献も 1 mJ のみに限定されている[5]。この文献では、焦点位置での加工結果と計算されたフルエンス分布を比較している。他の文献では、200 μJ 以下のパルスエネルギー条件を取り扱うが、これらも焦点位置に関する比較と検討に限定されている[6-8]。

mJ 級のパルスエネルギーを持つレーザ集光においては、焦点位置よりも上流側で大気の電離閾値を超えるため、焦点位置での加工は普遍的に適しているとは言えない。そのため、焦点位置から上流への発散現象を含む集光特性の変化を調査することが必要である。しかしながら、伝搬方向に沿った加工とフルエンス分布の調査を中心とした先行研究は存在しない。特に重要なのは、サブ mJ から数 mJ のパルスエネルギーにわたるレーザ集光特性の変動とそれに対応する加工特性変化を包括的に調査し、アブレーションとレーザ衝撃加工における高パルスエネルギーの活用方法を確立することである。また、非線形な集光特性変化を開始するレーザ強度の閾値や位置を調査することには意義がある。

本章では、パルス幅 100 fs に固定し、0.1 mJ から 5.0 mJ のパルスエネルギー範囲における超短パルスレーザ集光特性およびドライレーザピーニング効果のパルスエネルギー依存性を調査した。焦点位置近傍での非線形伝搬計算とアブレーション加工を実施し、集光時のフルエンス分布を評価した。得られたデータに基づき、ドライレーザピーニングの照射位置を制御し、各パルスエネルギーにおけるピーニング効果の最大化を目指した。パルスエネルギーやフルエンス、アブレーション径がピーニング加工に及ぼす影響を調査し、ピーニング加工のレーザ照射条件選定指針を示す。ピーニング効果は、圧縮残留応力分布と塑性変形領域を示唆する半値全幅の増加領域を指標に用いた。本研究は、高エネルギー超短パルスレーザ加工の普及、普遍化、効率化に不可欠な基礎的知見を提供するものである。

5-2　実験方法、計算方法

5-2-1　供試材料

本研究では、純アルミニウムとアルミニウム合金 A2024-T351 を試験片として用いた。ピーニングに用いた A2024-T351 の化学組成を Table 5.1 に、機械的性質を Table 5.2 に示す。A2024-T351 試験片は 1 辺 10 mm の立方体である。レーザ照射の前処理として、耐水研磨紙#2000 による研磨後、粒径 1 μm のダイヤモンド粒子を用いたバフ研磨を行った。

Table 5.1 Chemical compositions (wt.%) of the 2024-T351 aluminum alloy.

Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
0.0780	0.0970	4.5790	0.5340	1.5130	0.0010	0.0330	0.0237	Bal.

Table 5.2 Mechanical properties of A2024-T351.

0.2% proof stress (MPa)	Tensile strength (MPa)	Elongation (%)
321	464	19.2

5-2-2　レーザ照射条件、レーザ加工条件

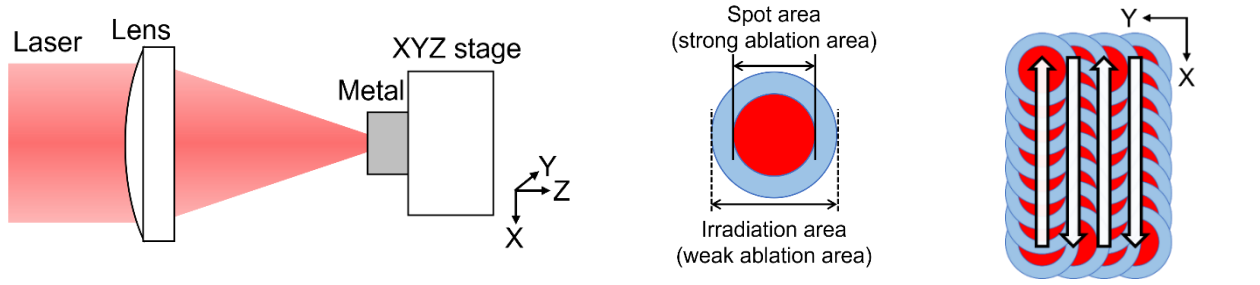
本章で用いた超短パルスレーザ装置は、Spectra physics, Inc 製の Solstice Ace である。中心波長は 800 nm、ビーム径（レーザ強度が$1/e^2$となる半径）は 5.0~5.5 mm、最大パルスエネルギーは 6.4 mJ、最小パルス幅は半値全幅で約 100 fs である。最大繰り返し周波数は 1 kHz である。レーザ照射条件はパルス幅を半値全幅で 100 fs に統一し、パルスエネルギーを 0.1 mJ から 5.0 mJ まで変化させ、パルスエネルギー依存性に着目する。レーザ集光条件は、焦点距離 250 mm の球面平凸レンズを用いた。焦点距離は設計波長 546.1 nm に対して定義されており、波長 800 nm に対する焦点距離は 253.67 mm である。比較的長い焦点距離の選定理由は、本レーザ装置の大きなビーム径では、短焦点距離レンズ使用時に球面収差が生じるためである（第 6 章で検討）。また、第 3 章と同程度の開口数で実験を行うためである。Fig. 5.1(a)に示すように、収差が小さくなるように平凸レンズの凸面にレーザを入射し、X-Y 自動ステージ上に設置した試験片に大気中でレーザを集光照射した。

超短パルスレーザアブレーションによって形成される照射痕は、Fig. 5.1(b)に示すように、アブレーション径と照射径から成り立つ。厳密には照射径領域も弱くアブレーションするため、強いアブレーション領域をスポット径、弱いアブレーション領域を照射領域径と定義する。ピーニングは Fig. 5.1(c)に示すように、最適なレーザ照射位置で試験片表面全体に超短パルスレーザを重畳照射するプロセスである。最適なレーザ照射位置を特定するために、焦点位置近傍で光軸方向にステージを移動させ、連続的にアブレーション加工を行った。最適なレーザ照射位置は照射径が小さく、アブレーション径が最大となる位置とした。これは、最もレーザが集光した高いフルエンス条件が望ましいと考えられているためである。アブレーション面積に対するパルス間のステップ距離を定めることにより、単位面積あたりの照射回数を表すカバレージを定義する。

$$Coverage(\%) = \pi D^2/4d^2 \times 100 \tag{5.1}$$

ここで、Dはシングルショットにおけるアブレーション径(μm)、dはパルス間のステップ距離(μm)で

ある。アブレーション径は光学顕微鏡観察により決定する。本実験では、カバレージを 700%に統一し、(5.1)式から各条件におけるパルス間のステップ距離dを決定した。繰り返し周波数は 125 Hz としてピーニング加工を行った。



(a) Irradiation method of ultrashort pulse laser.

(b) Laser irradiation mark.

(c) Scan irradiation method of the ultrashort pulse lasers.

Fig. 5.1 Schematic illustrations of the experimental setup of dry laser peening.

5-2-3　光学顕微鏡による照射痕観察

ピーニング施工における最適なレーザ照射位置決定のために、焦点位置近傍での照射領域推移を観察した。アブレーション領域を精度良く観察するために、それぞれの位置でレーザを 8 発照射し、光学顕微鏡（HiROX 製、KH-7700）による観察を行った。

5-2-4　レーザ顕微鏡によるアブレーション観察

パルスエネルギーに依存したアブレーション分布を調査するために、パルスエネルギーが 0.1 mJ、0.5 mJ、1.0 mJ、3.0 mJ、5.0 mJ の条件下で、アブレーション深さ測定を行った。測定にはレーザ顕微鏡（キーエンス製、VK-9700）を用いた。測定時の倍率は 20 倍または 50 倍とし、平面方向の分解能は 0.2913 μm、深さ方向のピッチは 0.02 μm とした。1 回の照射ではアブレーション深さが小さく、計測誤差が大きいため、8 回照射時の観察を行った。アブレーション分布はレーザ顕微鏡によって取得されたデータを、試験片の傾きを補正して求めた。焦点位置より上流 12.5 mm 位置から下流 4.0 mm 位置まで、0.5 mm ごとに観察し、集光に伴うアブレーション領域推移を取得した。

5-2-5　cosα 法による深さ方向の残留応力分布計測

パルスエネルギーが試験片表層および内部の応力状態に及ぼす影響を評価するために、ドライレーザピーニング後の試験片に対して、cosα 法による残留応力測定を行った。残留応力測定には X 線残留応力装置（パルステック製、μ-X360s）を用いた。本実験では、波長 2.2897 Å である Cr 管球の Kα 線を試料表面に対し、25 degree で入射し、解析に使用する回折面を(311)面として測定を行った。ヤング率は 69.31 GPa、ポアソン比は 0.348 とした。また、ドライレーザピーニングを施した試料に対して、電解研磨と X 線残留応力測定を交互に繰り返し、深さ方向の残留応力分布を破壊的に求めた。電解研磨には鉄鋼・ステンレスの他、アルミニウムにも使用可能な中性の電解液であるマイトスケーラ液 SUSμX360 を用いた。

5-2-6　非線形伝搬計算方法

大気の非線形光学現象を考慮した非線形伝搬方程式は第 2 章で説明した。数値計算に用いた非線形シュレディンガー方程式は次の通りである。

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial \xi} = \frac{i}{2k_0}\Delta_\perp \mathcal{E} - i\frac{k_0^{(2)}}{2}\frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial \tau^2} + i\frac{k_0}{n_0}n_2 I\mathcal{E} - \frac{1}{2}\frac{\mathrm{W}(I)K\hbar\omega_0(\rho_{nt}-\rho)}{I}\mathcal{E} - \frac{\sigma_{IB}(\omega_0)}{2}(1+i\omega_0\tau_c)\rho\mathcal{E} \qquad (5.2)$$

右辺において、第一項は回折、第二項は分散、第三項から第六項は非線形光学効果である。第三項は光カー効果、第四項はラマンカー効果、第五項は大気の電離によるエネルギー損失、第六項の実部はプラズマへの吸収、虚部はプラズマデフォーカシングを表す。第 4 章と異なり、パルス幅は 100 fs と短いため、ラマンカー効果は無視した。

電子密度のレート方程式は次のように計算した。

$$\frac{d\rho}{dt} = W(I)(\rho_{nt} - \rho) \qquad (5.3)$$

電離率は PPT モデルを用いて計算した。第 4 章の結果より、衝突電離はパルス幅 100 fs では十分に小さいと考えられるため、無視した。再結合も同様に無視した。

本計算で用いた物性値を Table 5.3 に、計算範囲や計算刻みなどの計算条件を Table 5.4 に示す。非線形光学効果の物理的な特性は、波長 800 nm において広く研究されてきたため、カー指数や PPT モデルは良く知られた値を用いた。電子の衝突までにかかる平均自由時間は、レーザフィラメンテーション分野でよく扱われる 350 fs とした。この値は数十 fs から数ピコ秒に変動させても計算結果には大きな影響を及ぼさないことを確認した。

レーザ伝搬計算は、以下の条件で実施した。パルスエネルギーが 1.0 mJ 以下の場合、パルス中心が焦点位置より上流 10 mm の位置から開始し、パルスエネルギーが 3.0 mJ、5.0 mJ の場合、上流 15 mm 位置から開始した。これらの計算開始位置までは、レーザ強度が十分に低く、線形伝搬領域での集光が可能であるとした。半径方向には計算開始位置でのビーム径の 3 倍以上を確保し、時間方向には±方向においてパルス幅の 6 倍とした。各計算刻みは、線形伝搬を正しく計算できるように十分に小さく設定した。伝搬計算刻みは非線形項による変化が Fig. 4.3 を満たすように調節し、非線形項の影響が小さい場合には最大 24 倍の計算刻みを採用し、計算コストを抑えた。これらの条件での数値計算はシングル CPU（Corei9-11900K, Intel Corp.）で行われ、約 16 時間、24 時間を要する。

Table 5.3 The parameter used in this calculation.

Parameter	Value
n_0: linear refraction index	1.000283
$k_0^{(2)}$: group velocity dispersion	0.2 fs^2/cm [9]
n_2: nonlinear index coefficient	2.9×10^{-19} cm^2/W [10]
τ_c: electron collision time	350 fs [11]
σ_{IB}: cross section for inverse Bremsstrahlung	5.5×10^{-20} cm^2

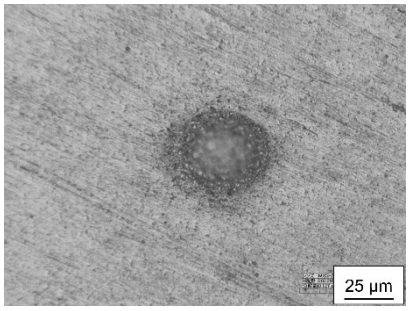
Table 5.4 Computational dimensions for each pulse energy in the numerical simulations.

Pulse energy	r	τ	ξ	dr	$d\tau$	$d\xi$
0.1 mJ						
0.5 mJ	[0, 600] μm		[-10, 5] mm			
1.0 mJ		[-600, 600] fs		0.75 μm	0.25 fs	75 nm
3.0 mJ	[0, 750] μm		[-15, 5] mm			
5.0 mJ						

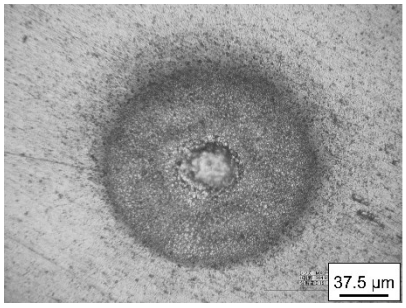
5-3　実験結果

5-3-1　光学顕微鏡による照射痕観察結果

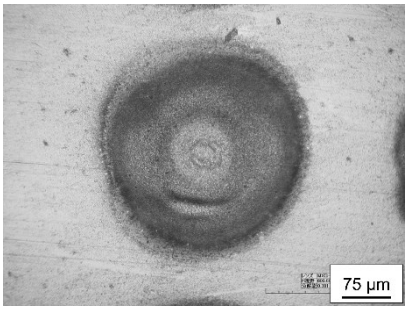
初めに、パルスエネルギー0.1 mJ、0.5 mJ、1.0 mJ、3.0 mJ、5.0 mJ の各条件における、およそ焦点位置での純アルミニウムへの照射痕の観察結果を Fig. 5.2(a)-(e)に示す。焦点位置は 0.1 mJ で最も集光する位置とした。また、それぞれの照射痕半径の値を Table 5.5 に示す。光学顕微鏡による照射痕の判定は母材と比較して円形に着色する領域として判定した。パルスエネルギーが大きな条件ほど、焦点位置での照射痕径が大きく、アブレーション領域は小さい。ドライレーザピーニングにおいて、大きなフルエンスは有効であるため、パルスエネルギーが大きな条件では焦点位置での加工は不適切である。したがって、焦点位置に限定せず、近傍で照射痕の大きさが最小となる位置を探索した。



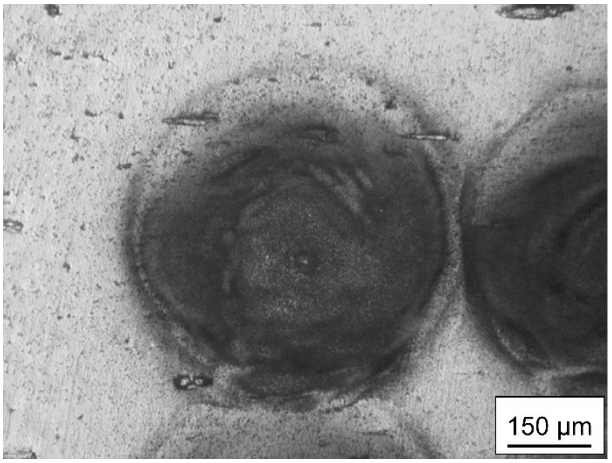
(a) 0.1 mJ.



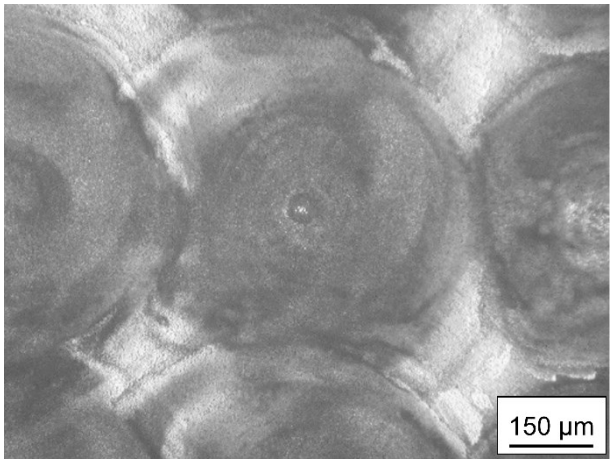
(b) 0.5 mJ.



(c) 1.0 mJ.



(d) 3.0 mJ.



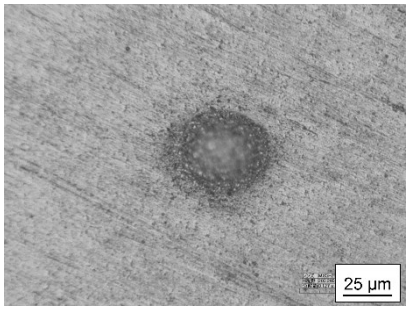
(e) 5.0 mJ.

Fig. 5.2 Optical microscope images of irradiation marks at the focal position for each pulse energy.

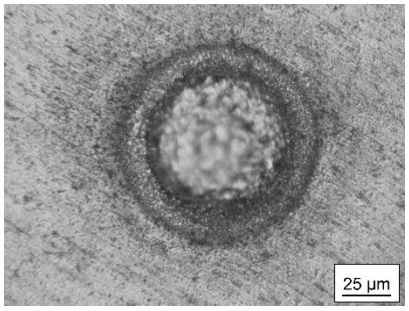
Table 5.5 Measurement of irradiation area radius at the focal position.

Pulse energy	Radius of irradiation marks (μm)
0.1 mJ	24
0.5 mJ	87
1.0 mJ	158
3.0 mJ	284
5.0 mJ	321

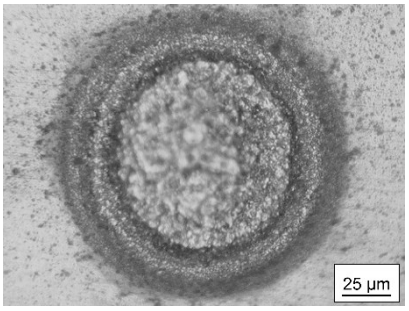
次に、パルスエネルギー0.1 mJ、0.5 mJ、1.0 mJ、3.0 mJ、5.0 mJ の各条件において、最小となる照射痕の光学顕微鏡観察結果を Fig. 5.3 に示す。また、最小照射領域半径を Table 5.6 に示す。パルスエネルギーが大きくなるにつれ、焦点位置よりも上流側で最小の照射痕が得られることが分かった。最小の照射痕径は大きくなり、集光が不十分となることが明らかである。パルスエネルギー0.5 mJ、1.0 mJ の条件では穴形状はフラットであり、外周部に無駄な照射領域が存在しない。一方、パルスエネルギーが 3.0 mJ や 5.0 mJ の条件では、アブレーション領域の外側に弱い照射領域が広がっており、アブレーションのエネルギー効率が低いことが示唆される。



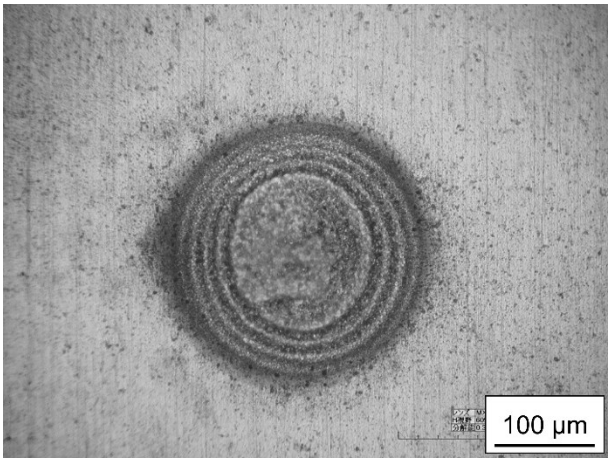
(a) 0.1 mJ.



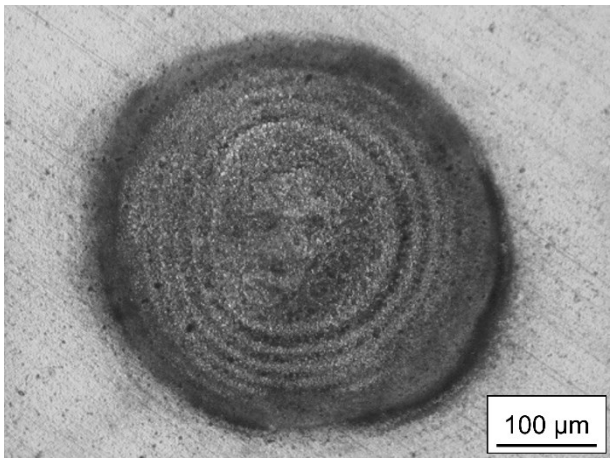
(b) 0.5 mJ.



(c) 1.0 mJ.



(d) 3.0 mJ.



(e) 5.0 mJ.

Fig. 5.3 Optical microscope images of minimum irradiation marks for each pulse energy.

Table 5.5 Measurement of minimum irradiation area radius.

Pulse energy	Radius of irradiation marks (μm)
0.1 mJ	24
0.5 mJ	53
1.0 mJ	74
3.0 mJ	132
5.0 mJ	200

大気中でのパルスエネルギーごとの照射痕半径の推移を Fig. 5.4 に示す。パルスエネルギーの増加に伴い、焦点位置よりも上流側でのレーザ発散が確認できる。パルス幅が 100 fs であるため、レーザ強度は十分に高く、大気の非線形光学現象の影響を受け、レーザが発散すると考えられる。線形伝搬領域における焦点位置では既に広がった照射痕となり、適切な加工のためには上流側へのレーザ照射位置制御が必要であると考えられる。パルスエネルギー0.5 mJ では上流 1.3 mm、1.0 mJ では上流 2.5 mm、3.0 mJ では上流 5.0 mm、5.0 mJ では上流 6.5 mm への移動が適切であると考えられる。

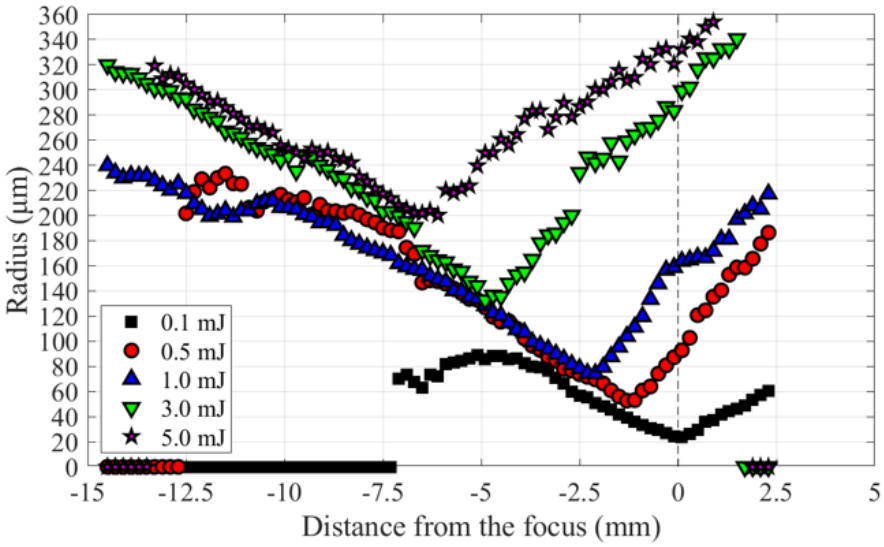


Fig. 5.4 Profile of irradiation area radius transition with optical microscope.

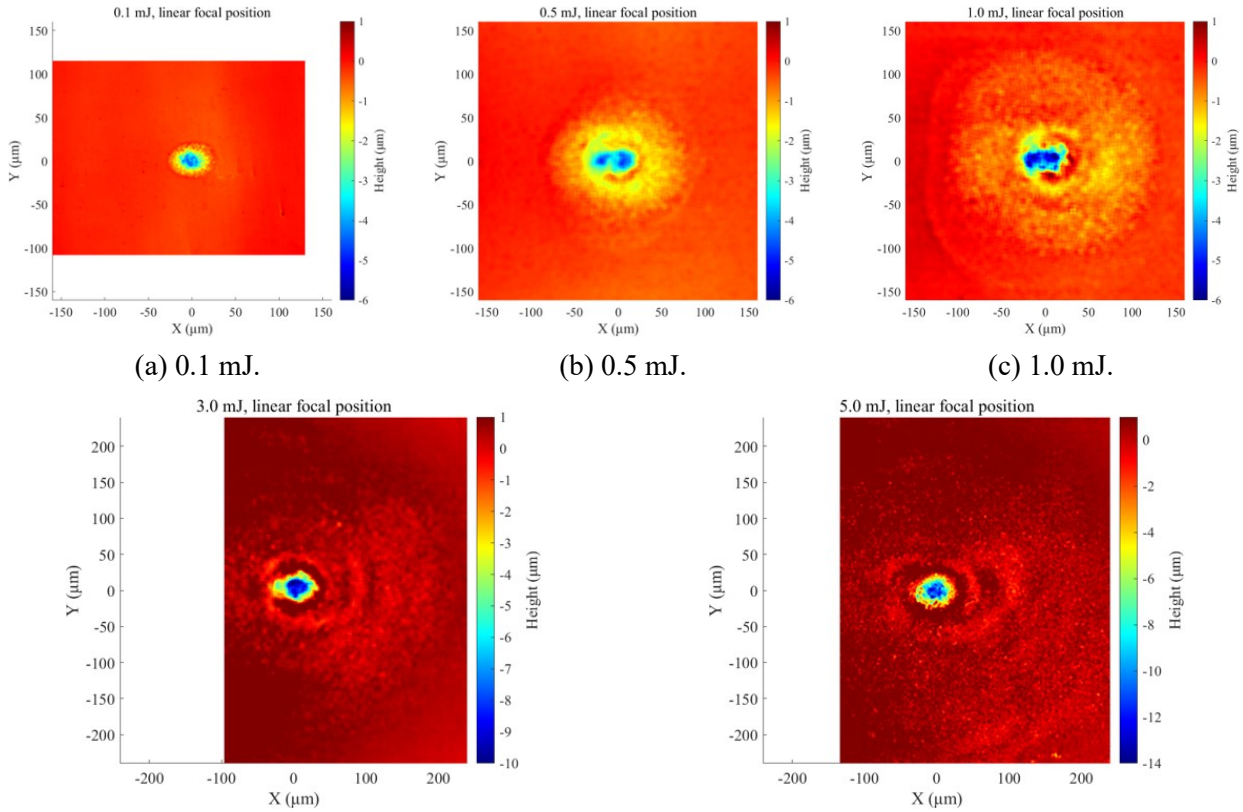
5-3-2　レーザ顕微鏡によるアブレーション観察結果

レーザ加工において、アブレーション領域推移は照射領域推移と同様に重要である。A2024-T351 におけるパルスエネルギーごとのアブレーション分布とその領域推移を示す。アブレーション観察は 0.5 mm 刻みで行った。純アルミニウムとアブレーションの傾向は同様である。Al2024 の線形伝搬領域における焦点位置は、パルスエネルギー0.02 mJ において最も集光した位置とした。おおよそ線形焦点位置でのアブレーション分布を Fig. 5.5 に示す。

パルスエネルギーの増加とともに、焦点位置では周囲に弱いアブレーションが観察され、レーザ照射領域の拡大が示唆される。3.0 mJ、5.0 mJ 条件では照射痕が非常に大きく、レーザ顕微鏡の最も低い倍率 10 倍でも収めきれなかった。レーザ顕微鏡は倍率が小さい場合、計測精度が著しく低

下する。中心部にはそれぞれ 10 μm、14 μm 程度の深いアブレーションが形成され、その周囲に弱い照射領域が広がっている。レーザは発散しているため、中心部の深いアブレーションはメインパルスによるものではなく、プリパルスとポストパルスの影響であると考えられる[12]。

一般的なレーザ装置ではプリパルスのコントラスト比は 0.1%、ポストパルスのコントラスト比は 1%程度であるが、本実験で用いたレーザ装置の Solstice は実験当時の状態が悪く、プリパルスのエネルギー比率は 2%程度、ポストパルスは 6%程度あると算出された。プリパルスは複数のパルスがあり、それぞれは小さいエネルギーを持つため、ほぼ線形に集光でき、線形焦点位置で非常に高いフルエンスとなる。プリパルスの影響については考察で述べる。6%程度のエネルギーを持つポストパルスは、メインパルス到達後 100 ns 程度で通過するため、メインパルスによって生成された大気のプラズマや金属プラズマに発散、遮蔽されるため、金属に到達できないと考えられる。そのため、mJ 級のパルスエネルギーを用いたレーザアブレーションでは、プリパルスのコントラスト比に注意が必要である。



(a) 0.1 mJ. (b) 0.5 mJ. (c) 1.0 mJ.

(d) 3.0 mJ. (e) 5.0 mJ.

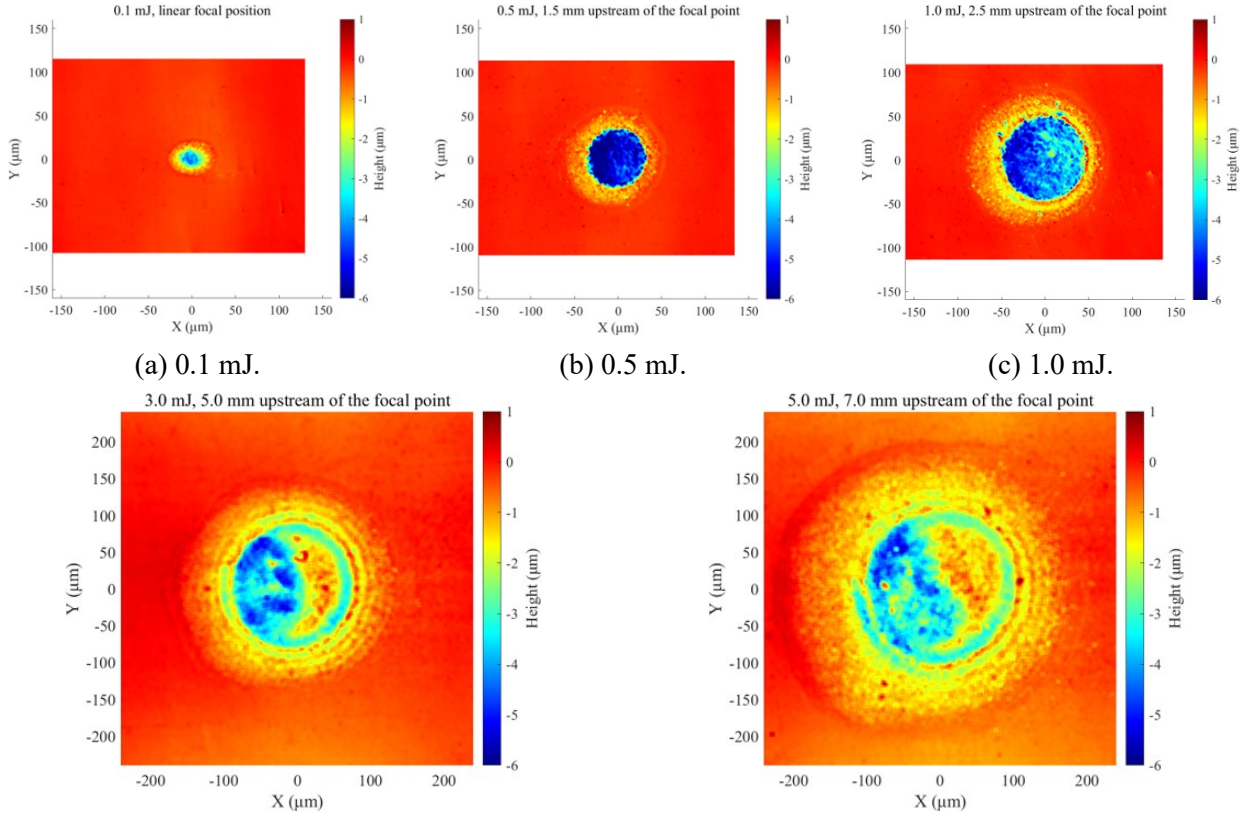
Fig. 5.5 Ablation distribution at the linear focal position for each pulse energy.

次に、およそ最集光位置でのアブレーション分布を Fig. 5.6 に示す。パルスエネルギー0.5 mJ と 1.0 mJ の条件では、底面が比較的平坦なアブレーション分布が得られ、線形焦点位置よりも深いアブレーションが得られた。したがって、効率的なアブレーション加工を行うためには、焦点位置よりも上流側に照射位置を移動することが有効である。焦点距離が 250 mm と比較的長い条件であっても、適切な照射位置制御により優れた加工が可能であることが示される。

一方、パルスエネルギー3.0 mJ と 5.0 mJ の条件では、アブレーション領域の外側に弱い照射領域

が生じ、集光には制約が生じた。アブレーション分布には左右に偏りが生じるが、これはレーザ装置固有の問題である。本実験で使用したレーザ装置では、焦点位置でレーザ集光品質は良好である一方、上流側の集光過程ではレーザ強度に偏りが生じることが確認されている。このレーザ強度の偏りは理想状態よりも高いレーザ強度を生じ、大気の非線形光学現象の影響を受け、レーザ発散をより上流側で生じさせる要因となり得るため、このような左右差や誤差はある程度生じてしまう。

以上より、mJ 級のパルスエネルギーでの超短パルスレーザ加工においては、焦点位置よりも上流側での照射位置制御が不可欠である。また、3.0 mJ 以上の条件では照射位置制御を行っても加工効率や加工品質の劣化が避けられないことが示された。これらの課題の克服には、焦点距離を短くする、ビーム径を拡大するなどの手法を用いて、開口数を向上させる必要があると考えられる。

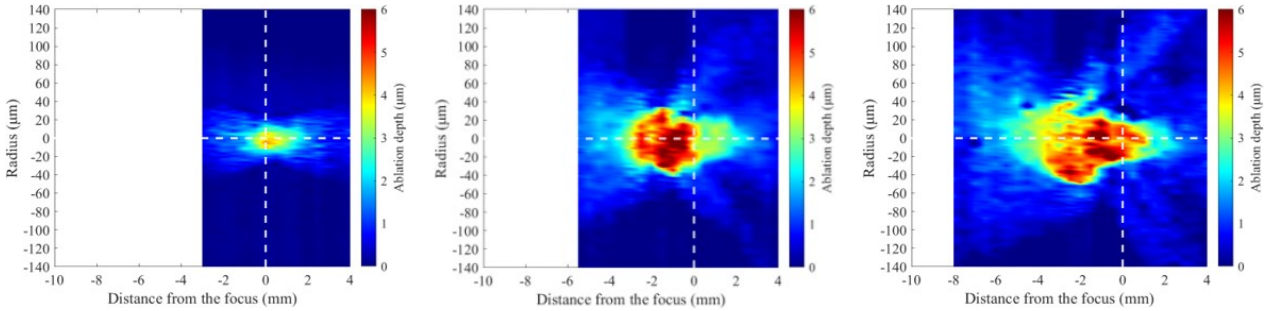


(a) 0.1 mJ. (b) 0.5 mJ. (c) 1.0 mJ.

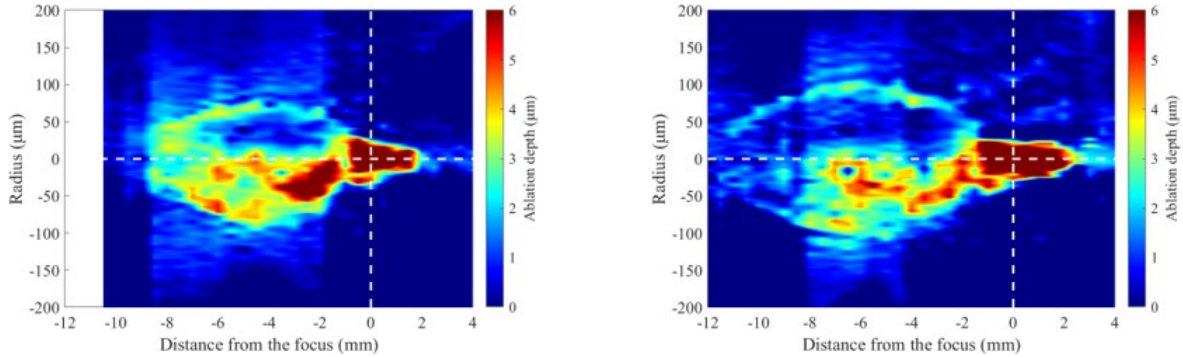
(d) 3.0 mJ. (e) 5.0 mJ.

Fig. 5.6 Ablation distribution at the most focused position for each pulse energy.

次に、0.5 mm 刻みで取得したアブレーション分布を伝搬方向に並べることで得られたアブレーション領域推移を示す。X 方向と Y 方向で二種類のグラフを作ることができるため、それぞれ Fig. 5.7、Fig. 5.8 に示す。パルスエネルギー0.1 mJ 条件では、焦点位置でおよそ対称的なアブレーション分布である。しかし、パルスエネルギーが増加すると、焦点位置から上流側でのレーザ発散を確認できる。パルスエネルギー3.0 mJ や 5.0 mJ 条件では集光時のレーザ強度分布の偏りの影響で、アブレーションの生じにくい領域が存在する。パルスエネルギーを増加してもメインパルスによるアブレーション深さは増加せず、アブレーション径が拡大するのみであることが示された。なお、これらのグラフではカラースケールを統一したため、パルスエネルギー3.0 mJ や 5.0 mJ 条件における焦点位置でのアブレーションはさらに深い（それぞれ 10 μm、14 μm）ことに留意する。

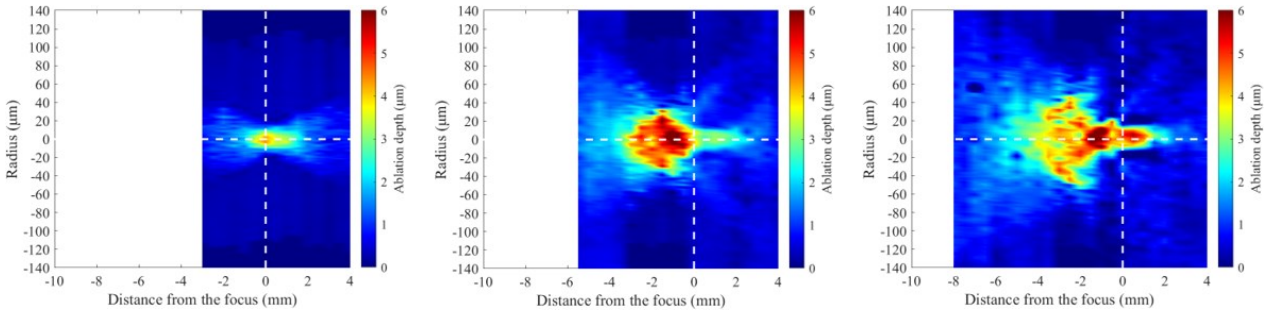


(a) 0.1 mJ. (b) 0.5 mJ. (c) 1.0 mJ.

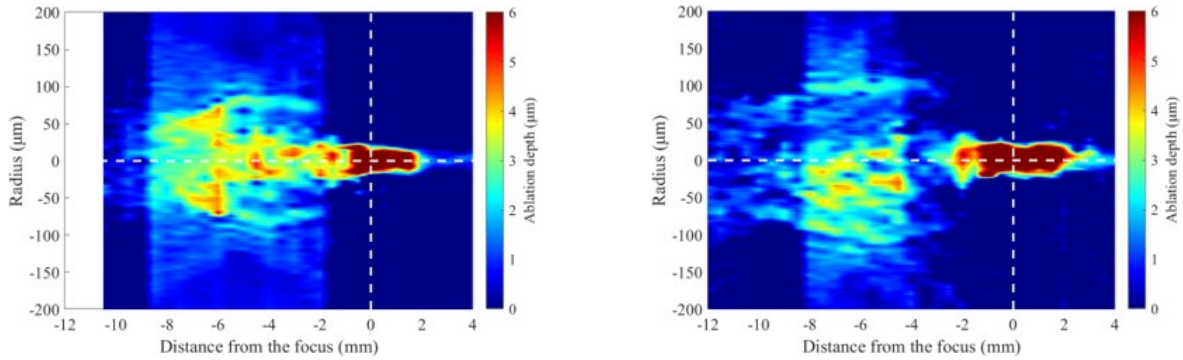


(d) 3.0 mJ. (e) 5.0 mJ.

Fig. 5.7 The transition of Y center ablation area in the propagation direction for each pulse energy.



(a) 0.1 mJ. (b) 0.5 mJ. (c) 1.0 mJ.

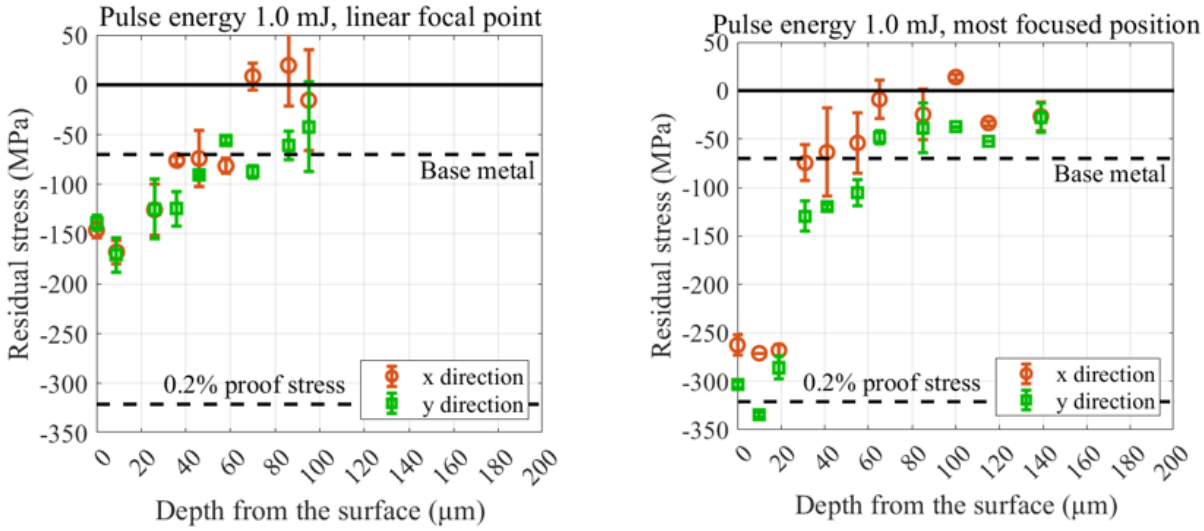


(d) 3.0 mJ. (e) 5.0 mJ.

Fig. 5.8 The transition of X center ablation area in the propagation direction for each pulse energy.

5-3-3　cosα 法による深さ方向の残留応力分布計測結果

ピーニングにおいて照射位置制御は重要である。パルスエネルギー1.0 mJ の条件において、線形焦点位置と最も集光した位置でのピーニングを行い、cosα 法によって深さ方向の残留応力分布を測定した結果を Fig. 5.9(a),(b)に示す。線形焦点位置でのピーニングでは、表層の圧縮残留応力値が小さく、十分な圧縮残留応力を付与できていない。非線形な集光特性を考慮した最も集光した位置でのピーニングでは、表層の圧縮残留応力値が 0.2%耐力まで導入される。0.2%耐力は、明確な塑性変形を示さない金属（アルミニウムなど）に対して、0.2%の永久ひずみが生じる応力と定義され、塑性変形を生じる目安の応力である。残留応力は弾性的な性質を持つため、0.2%耐力程度の圧縮残留応力の付与は十分なピーニング効果の付与を意味する。したがって、非線形なレーザ集光特性変化を生じる条件では、照射位置の制御は最も効果的なピーニング結果を得るために不可欠である。



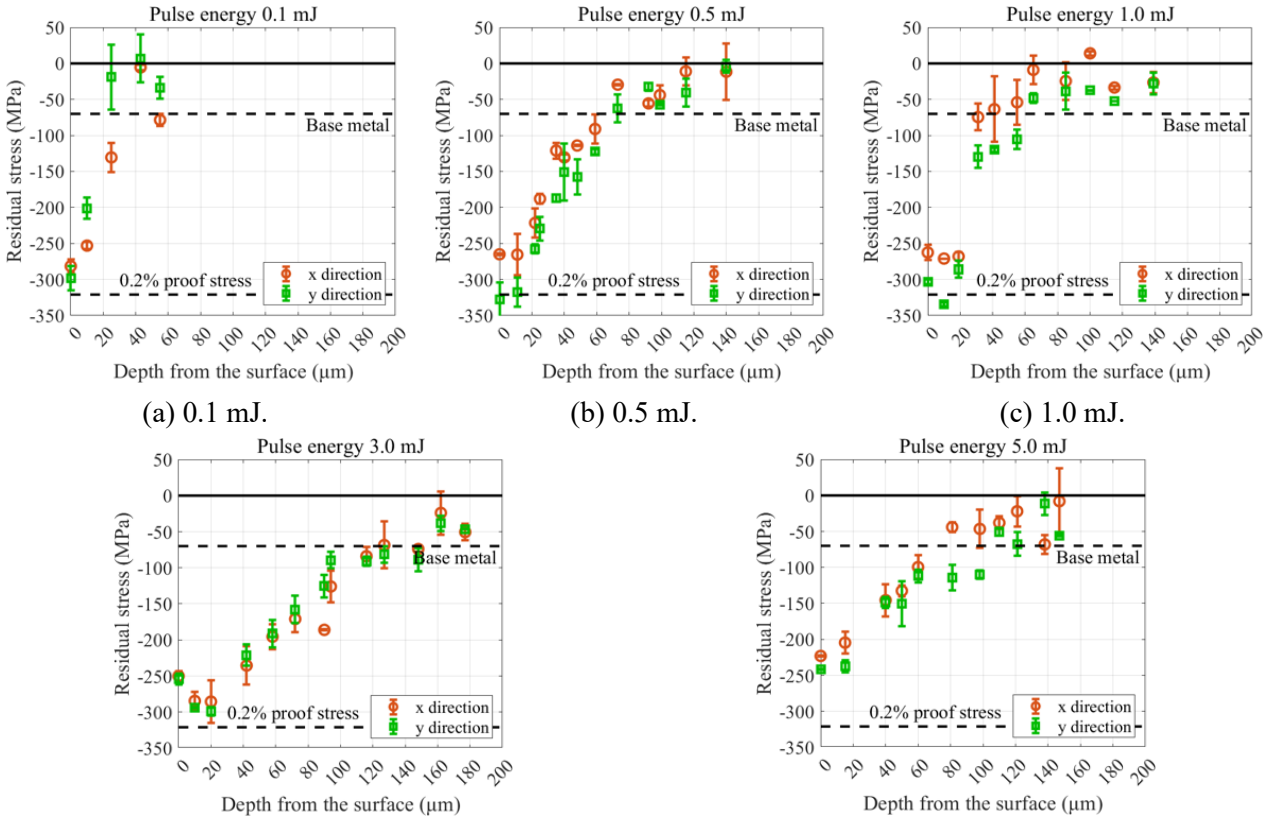
(a) At the linear focal position.　　(b) At the most focused position.

Fig. 5.9 Depth profile of compressive residual stress after peening for each irradiation position at 1.0 mJ.

次に、それぞれのパルスエネルギー条件において、最集光位置でピーニング加工を行い、深さ方向の圧縮残留応力分布を測定した結果を Fig. 5.10(a)-(e)に示す。パルスエネルギー0.1 mJ、0.5 mJ、1.0 mJ、3.0 mJ、5.0 mJ に対して、ピーニング加工位置のスポット径Dは 35 μm、80 μm、110 μm、160 μm、200 μm であり、照射間隔dは 12 μm、24 μm、32 μm、48 μm、68 μm とした。加工面への合計入力エネルギーはおおよそ一定である。パルスエネルギー5.0 mJ の条件を除いて、表層には 0.2%耐力と同等の圧縮残留応力が付与された。また、パルスエネルギーが大きくなるにつれて、圧縮残留応力付与深さは顕著に拡大した。具体的には、0.1 mJ 条件では約 30 μm、0.5 mJ 条件では約 70 μm、3.0 mJ 条件では約 120 μm であった。高いパルスエネルギーを用いてもアブレーション深さは増加しないが、アブレーション径が拡大するため、圧縮残留応力付与領域はアブレーション径に依存して大きくなると考えられる。

パルスエネルギー5.0 mJ 条件では、表層の圧縮残留応力値や圧縮残留応力付与深さが小さい傾向が見られた。これは最もアブレーション深さが小さい条件であったため、衝撃圧力や照射回数が不十分であったと考えられる。ピーニングには良いアブレーション効率が必要である。本集光条件では、高パルスエネルギー条件ではレーザ発散の影響は顕著であり、照射位置制御を行っても加工結

果には限界が生じることが示唆された。



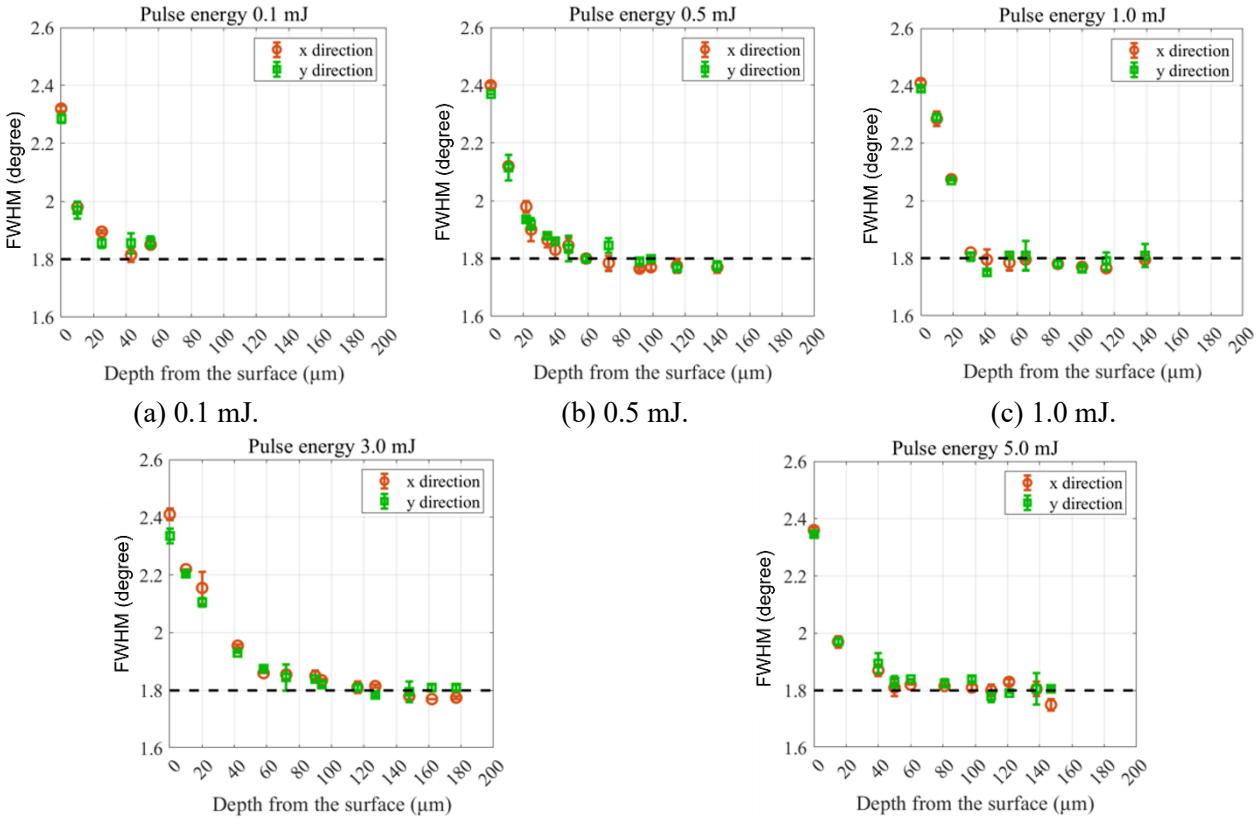
(a) 0.1 mJ. (b) 0.5 mJ. (c) 1.0 mJ.

(d) 3.0 mJ. (e) 5.0 mJ.

Fig. 5.10 Depth profile of compressive residual stress after peening at the most focused position for each pulse energy condition.

X 線回折法による残留応力計測時の半値全幅は、サイズ効果と歪み効果の指標となる（WH:Williamson-Hall 法）[13,14]。ここで、サイズ効果は結晶粒の微細化を意味し、歪み効果は点欠陥や転位などの線欠陥の導入を意味する。本研究ではこれらの効果は検討していないが、複数の回折面で半値全幅を測定することで、WH プロットの傾きと切片情報から結晶粒径や転位密度を推定できる。試験片の初期状態は同一であるため、半値全幅の変化はレーザピーニングによるものである。ナノ秒レーザピーニングとフェムト秒レーザピーニングの場合、サイズ効果と歪み効果ともに強力な塑性変形の結果として生じる材料組織変化である[15-18]。X 線回折法の検査領域内で残留応力の勾配が顕著に生じている場合、塑性変形の生じていない領域でも半値全幅の広がりが生じることがあるが、本計測では検査領域に対して圧縮残留応力の勾配は十分に小さい。したがって、半値全幅の増加領域は塑性変形を誘起可能な衝撃圧力が伝搬した領域であると考えられる。

Fig. 5.11(a)-(e)に圧縮残留応力計測時の深さ方向の半値全幅の推移を示す。母材の半値全幅は約 1.80 degree であった。すべての条件で表層の半値全幅は約 2.40 degree であり、塑性変形が生じたことを示す。圧縮残留応力分布と同様に、5.0 mJ 条件を除いて、パルスエネルギー増加とともに半値全幅増加領域が深くなることが観察された。圧縮残留応力は、塑性変形が生じた領域から応力の分配によりやや深くまで導入されるため、半値全幅の増加領域は圧縮残留応力付与深さよりも小さい傾向にある。したがって、衝撃圧力の伝搬深さの指標として、半値全幅の増加領域は有効である。



(a) 0.1 mJ. (b) 0.5 mJ. (c) 1.0 mJ.

(d) 3.0 mJ. (e) 5.0 mJ.

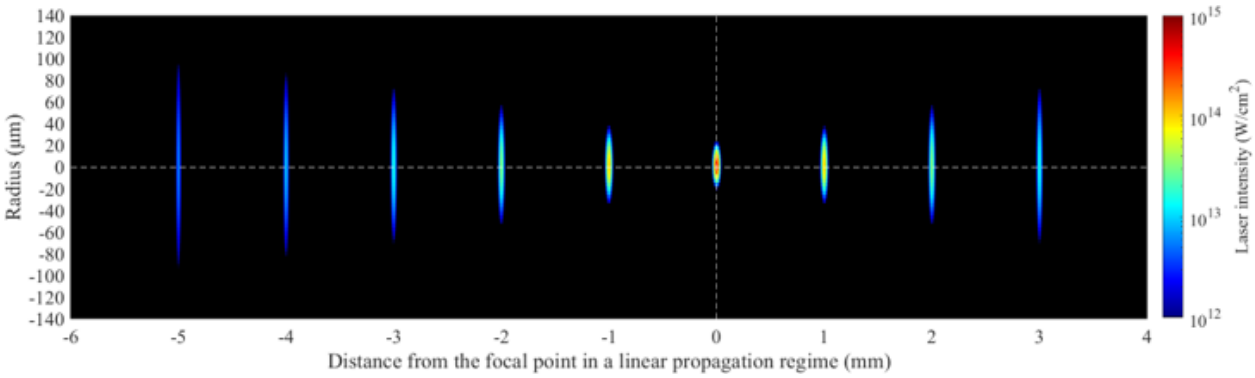
Fig. 5.11 Depth profile of FWHM after peening for each pulse energy condition.

5-4　レーザ集光特性の数値計算結果

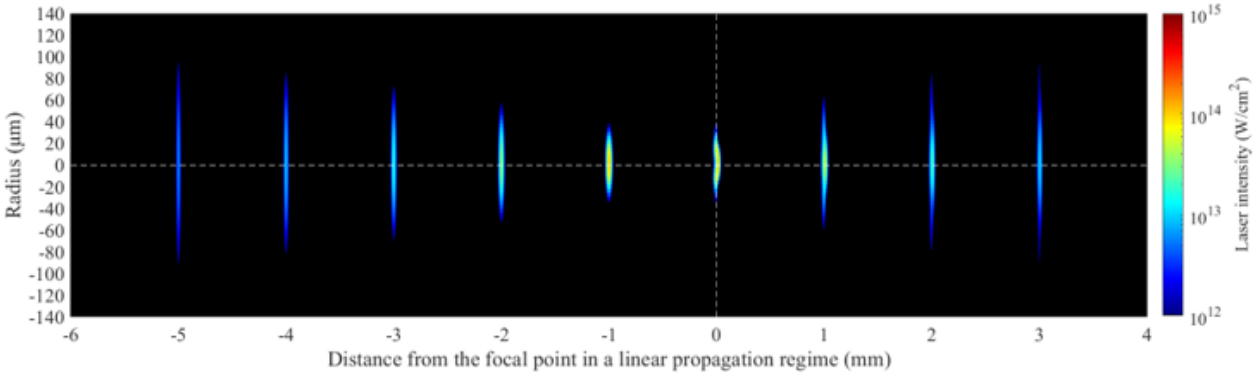
5-4-1　集光時レーザ強度分布のパルスエネルギー依存性

超短パルスレーザ集光特性を可視化するために、第 2 章、第 4 章で説明した通りに非線形伝搬計算を行った。初めに、レーザ集光時の各伝搬位置におけるレーザ強度分布を示す。ここでは、線形伝搬領域における集光位置を原点とし、伝搬軸を定めた。各パルスエネルギーにおいて、線形集光時と非線形集光時のレーザ強度分布変化を Fig. 5.12(a)-(j)に示す。計算結果は伝搬刻みに応じて動画形式で保存されるが、紙面ではパルスエネルギーが 1.0 mJ まではパルス中心が上流 5.0 mm から下流 3.0 mm まで、1.0 mm ごとの各位置におけるレーザ強度の時空間分布を、パルスエネルギーが 3.0 mJ、5.0 mJ 条件ではパルス中心が上流 10 mm から下流 3.0 mm まで、1.0 mm ごとの各位置におけるレーザ強度の時空間分布を示すこととする。

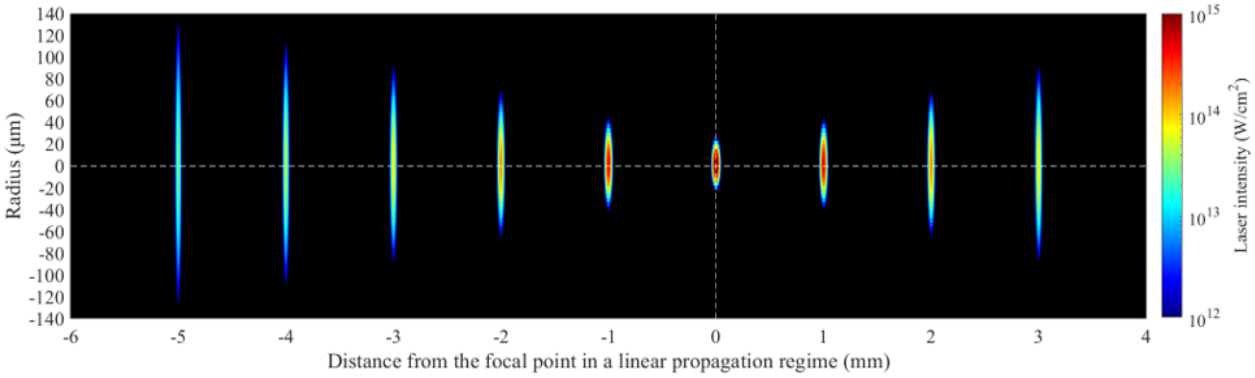
線形集光の場合、パルスエネルギーによらず焦点位置で最も集光し、焦点位置を中心に対称的なレーザ強度分布で発散する。一方、非線形集光では、焦点位置に到達する前にレーザの発散が開始する。パルスエネルギーが高い条件ほど、発散位置が上流側にシフトする。また、すべての条件で、レーザ発散位置での最大レーザ強度は 1.4~1.8×10^{14} W/cm^2 であり、本集光条件ではパルスエネルギーに関わらずレーザ強度は飽和することが計算された。



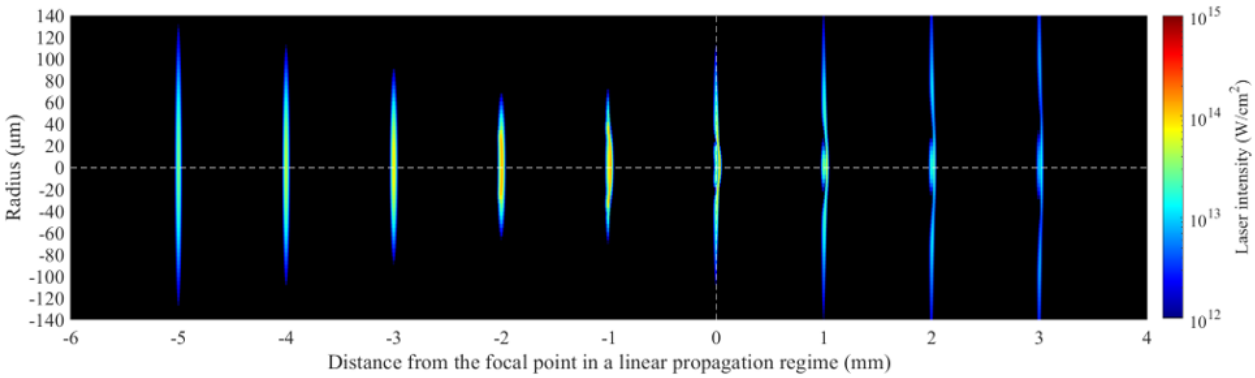
(a) In a linear propagation regime for a pulse energy 0.1 mJ.



(b) In a nonlinear propagation regime for a pulse energy 0.1 mJ.

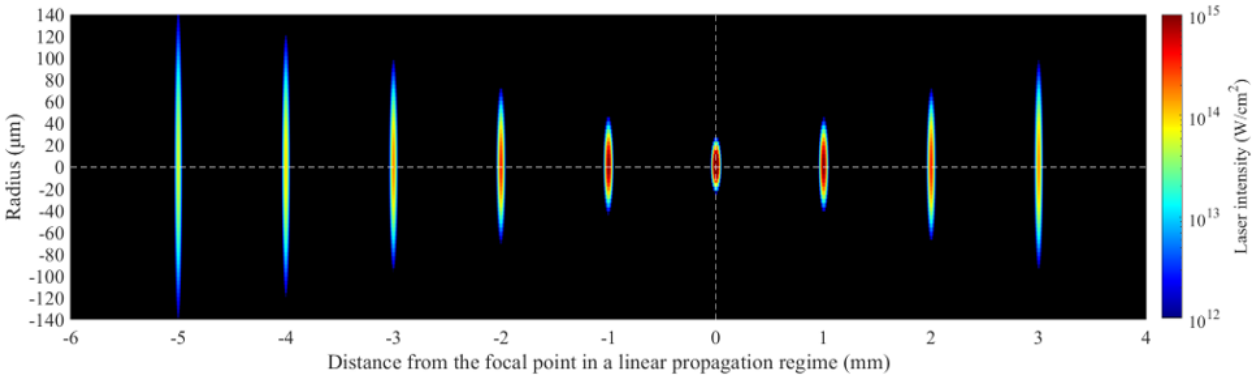


(c) In a linear propagation regime for a pulse energy 0.5 mJ.

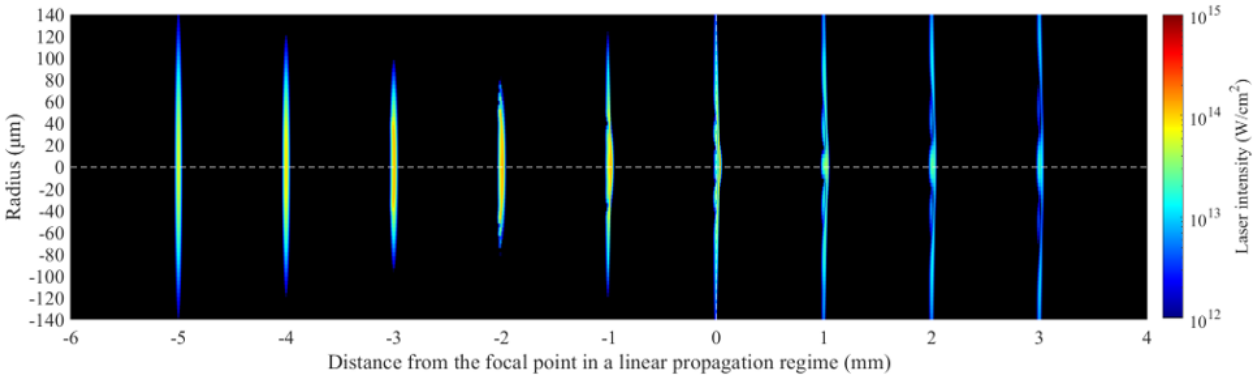


(d) In a nonlinear propagation regime for a pulse energy 0.5 mJ.

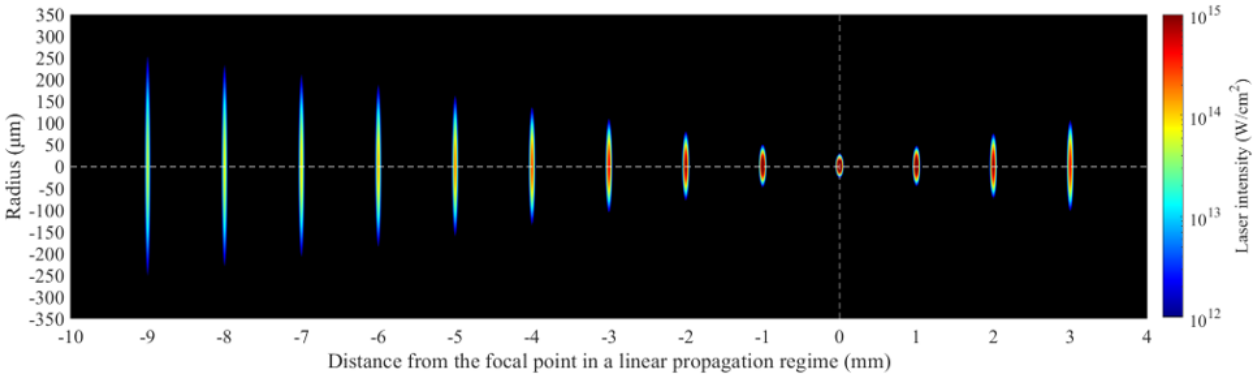
Fig. 5.12 Intensity distribution at laser focus under various conditions.



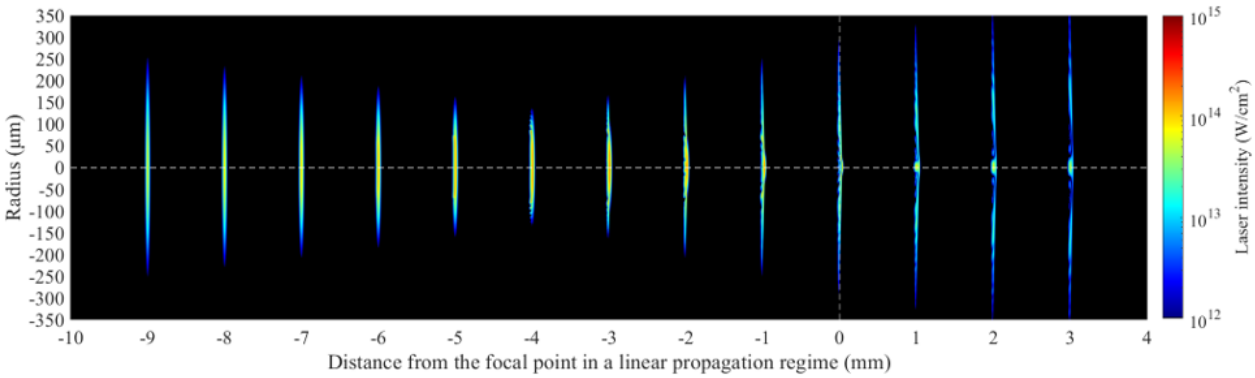
(e) In a linear propagation regime for a pulse energy 1.0 mJ.



(f) In a nonlinear propagation regime for a pulse energy 1.0 mJ.

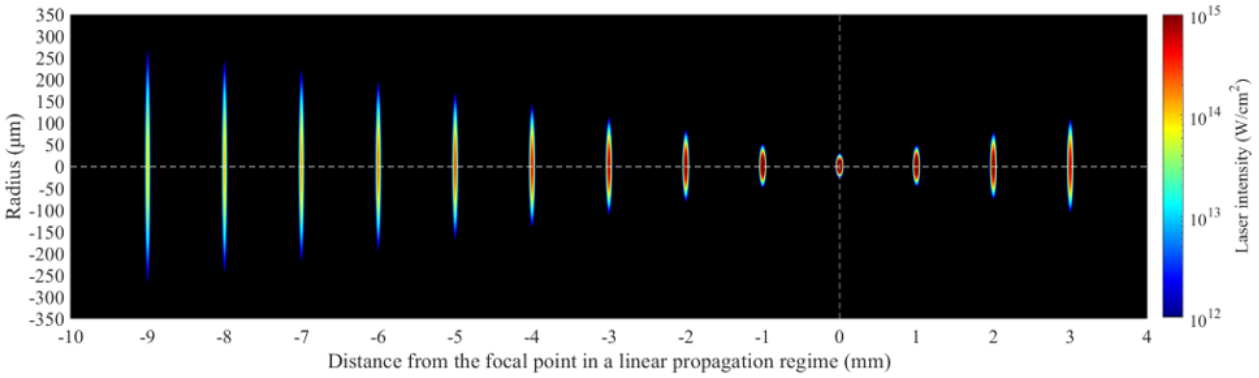


(g) In a linear propagation regime for a pulse energy 3.0 mJ.

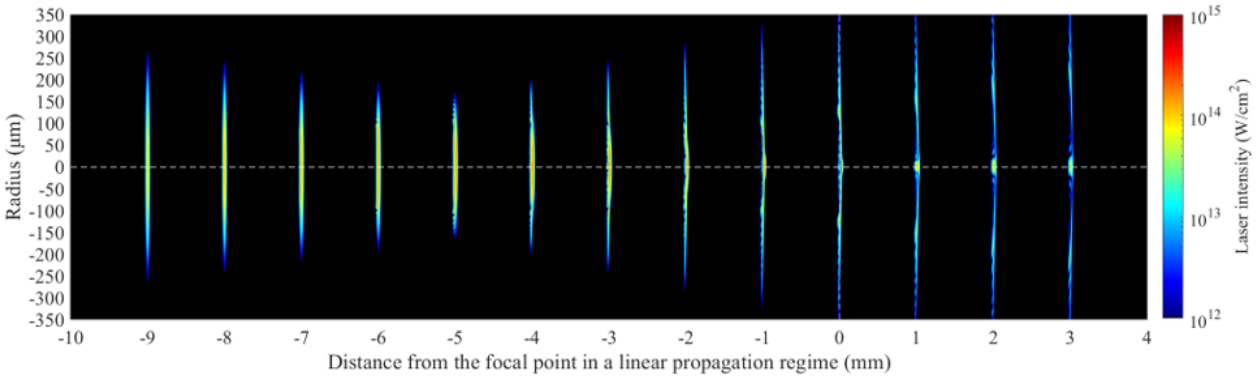


(h) In a nonlinear propagation regime for a pulse energy 3.0 mJ.

Fig. 5.12 Continued.



(i) In a linear propagation regime for a pulse energy 5.0 mJ.



(j) In a nonlinear propagation regime for a pulse energy 5.0 mJ.

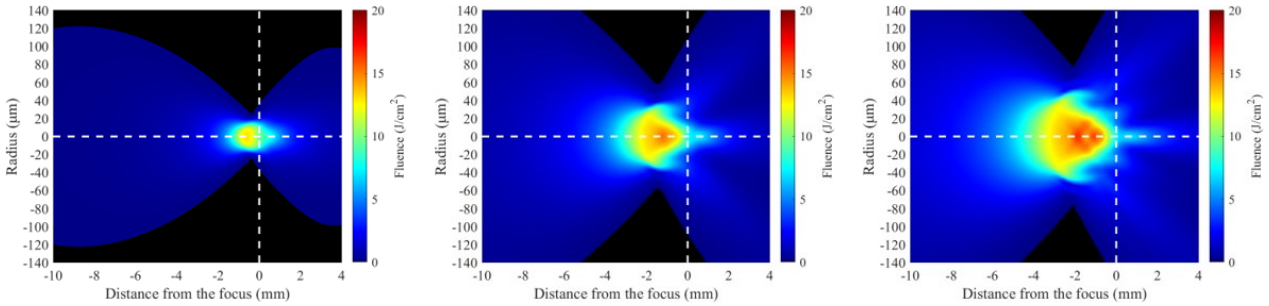
Fig. 5.12 Continued.

5-4-2　集光時フルエンス分布のパルスエネルギー依存性

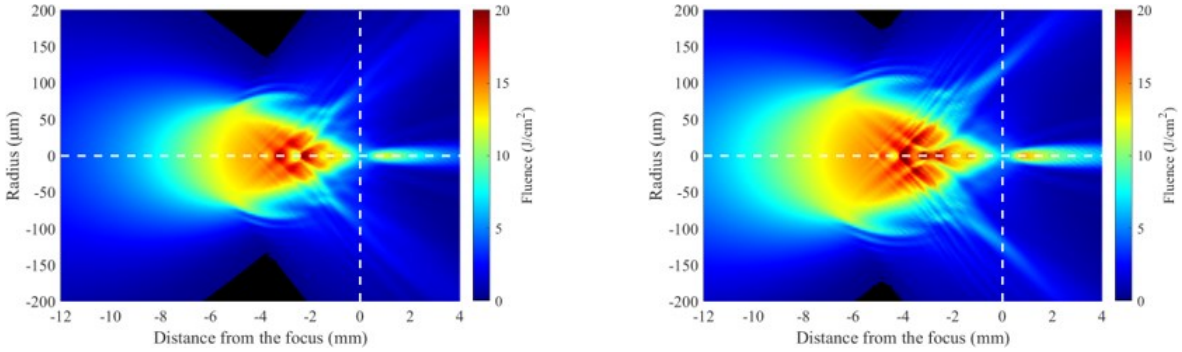
超短パルスレーザ集光時には、上流側でのレーザ発散現象や強度分布に変化が生じることが示された。超短パルスレーザ加工においては、レーザ強度の他に、単位面積あたりに照射されるエネルギー量であるフルエンス分布も重要である。フルエンス分布は各位置を通過するレーザ強度分布と微小時間の積により求めた。パルスエネルギー0.1 mJ、0.5 mJ、1.0 mJ、3.0 mJ、5.0 mJ の非線形集光時のフルエンス分布をそれぞれ、Fig. 5.12(a)-(e)に示す。

パルスエネルギーが増加するにつれ、レーザ外周部が最も集光する位置は上流側にシフトし、それぞれ上流約 0.5 mm、1.5 mm、2.5 mm、4.0 mm、5.5 mm である。これらの位置での最大フルエンスは 15 J/cm^2 程度である。レーザの発散により、パルスエネルギーを 10 倍に増加させても、最も集光する位置でのフルエンスの差は数 J/cm^2 程度にとどまる。線形集光時の各パルスエネルギーの最大フルエンスはそれぞれ、38 J/cm^2、191 J/cm^2、383 J/cm^2、1150 J/cm^2、1917 J/cm^2 であり、mJ 級のパルスエネルギーでは二桁以上のフルエンスの低下が生じることが示される。最集光位置の直後には、リング状に強まったフルエンスが観察され、これらは Fig. 5.8 のアブレーション領域推移の形状を説明できるものである。線形焦点位置より後方では、外周部に弱いレーザ照射領域が広がるが、中心部のフルエンスは 20 J/cm^2 程度まで高まることが示された。

以上より、大気の電離閾値を超えるフルエンス領域の超短パルスレーザ加工においては、パルスエネルギーの増加はフルエンスを増加させることができず、アブレーション径の拡大に寄与することが示された。これらの結果は、Fig. 5.8 で観察されたように、パルスエネルギーを増加させてもアブレーション深さが増加しない結果を証明するものである。



(a) 0.1 mJ. (b) 0.5 mJ. (c) 1.0 mJ.



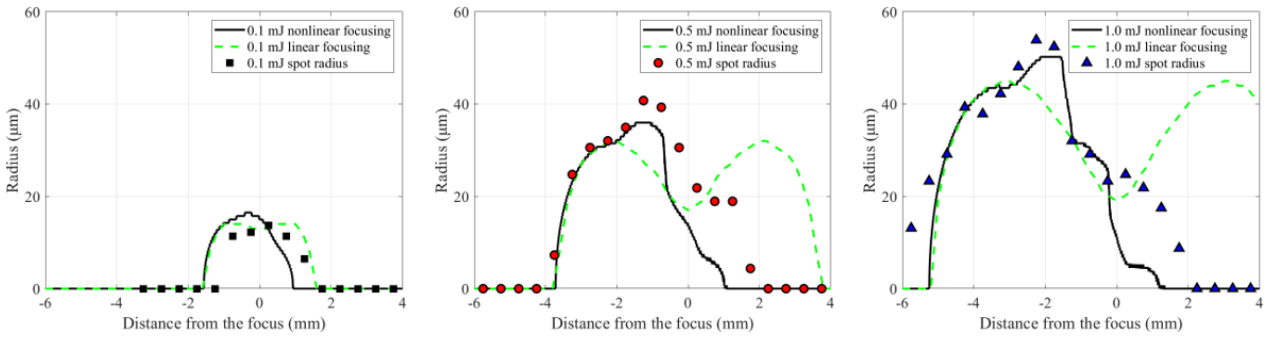
(d) 3.0 mJ. (e) 5.0 mJ.

Fig. 5.13 The transition of X center ablation area in the propagation direction for each pulse energy.

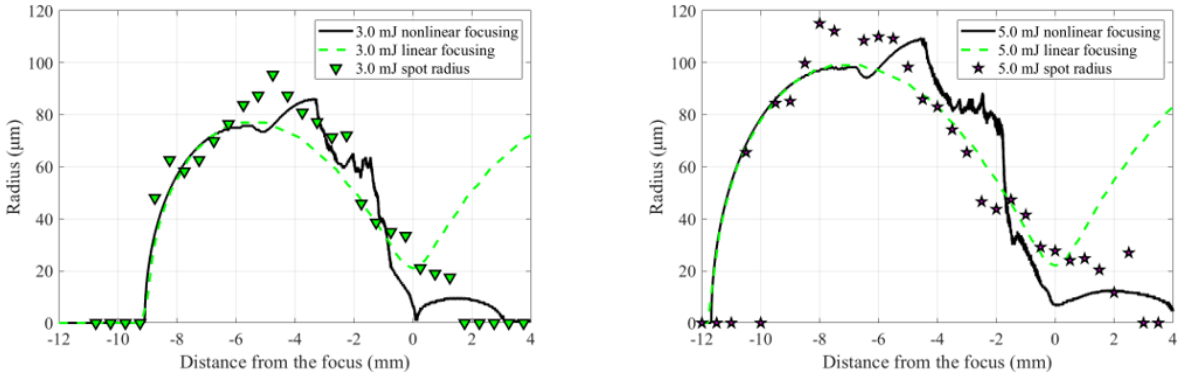
5-4-3　集光時フルエンス分布とアブレーション領域推移の比較

フルエンス分布の計算結果の妥当性を検証するため、実験によるアブレーション領域推移 Fig. 5.8 を用いて比較を行う。アブレーション領域のうち、8 発あたりのアブレーション深さが 2.5 μm を超える領域をスポット径と定義し、そのスポット径の推移を求めた。スポット径はデブリやレーザ強度の偏りによって、半径中心から上下左右方向には乱れが生じる。四方向の半径を計測し、最大値を記録することとした。パルス幅は一定であるため、アブレーションのフルエンス閾値は全条件で一定である。計算されたフルエンス分布とスポット径の推移が最も良い一致を示すフルエンス閾値は 5.5-6.5 J/cm^2 程度である。

計算されたフルエンス分布において、フルエンス閾値 6.0 J/cm^2 を超える線を描き、スポット径の推移と比較した結果を Fig. 5.14(a)-(e)に示す。また、線形集光時のフルエンス閾値の線を緑色の点線で示している。焦点位置を含む後方約 2.0 mm まではプリパルスによるアブレーションが生じるため、その領域は一致しないが、そのほかの領域において定量的な一致が見られる。パルスエネルギー0.1 mJ 条件では焦点位置後方でもアブレーションが生じるが、さらに高いパルスエネルギーでは焦点よりも後方でのアブレーションは一切生じない。したがって、大気の電離閾値を超える高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工において、照射位置制御が重要であることが実験と計算の両方を用いて示された。



(a) 0.1 mJ. (b) 0.5 mJ. (c) 1.0 mJ.



(d) 3.0 mJ. (e) 5.0 mJ.

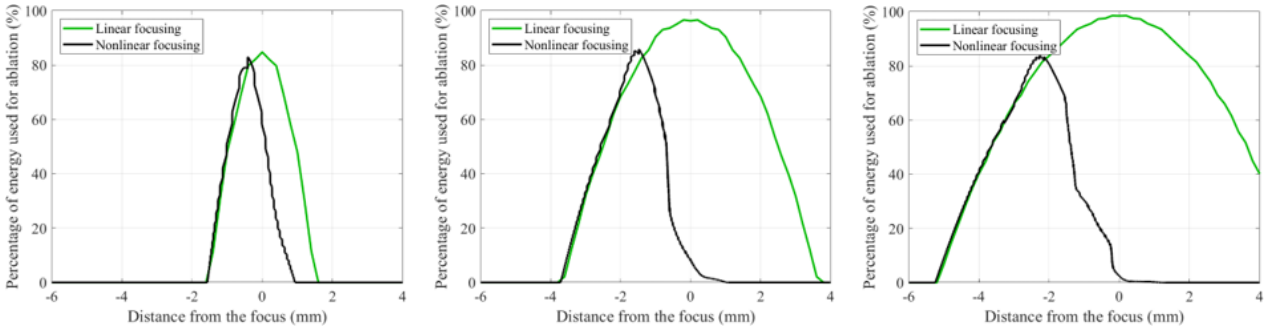
Fig. 5.14 Comparison of fluence thresholds from numerical simulation and the transition of spot area in the direction of propagation results.

5-5 考察

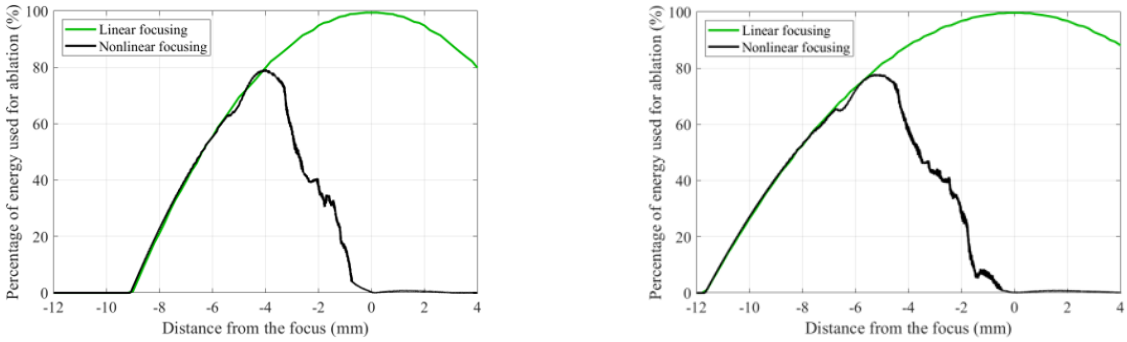
5-5-1 アブレーション効率とレーザ照射位置制御の指針

超短パルスレーザ加工において、アブレーションのエネルギー効率は重要である。アブレーション深さやアブレーション量はピーニングにおいても重要であり、アブレーションのエネルギー効率が最大となる位置での照射が有効と考えられる。非線形伝搬計算により得られるフルエンス分布において、Fig. 5.14 で求めたアブレーションのフルエンス閾値を超える領域の総エネルギーを求め、アブレーション効率を算出した結果を Fig. 5.15 に示す。パルスエネルギー0.1 mJ 条件では、上流 0.5 mm に移動することで線形集光時と同等のアブレーション効率を得ることができる。しかし、0.5 mJ 以上の条件では、アブレーション効率は最大でも約 80%程度となり、焦点位置での加工効率は 10%未満である。また、最大効率となる位置は上流側へシフトすることが示される。

したがって、大気中での超短パルスレーザ加工において、加工効率の低下は避けられない。特に、高パルスエネルギー条件では照射位置の制御を行っても限界が生じることが示される。大気中で最大限の加工を行うためには、これらの知見を用いて超短パルスレーザの照射位置を制御する必要がある。数 mJ の高パルスエネルギーを活用するためには、集光条件を強める必要があることが示された。



(a) 0.1 mJ. (b) 0.5 mJ. (c) 1.0 mJ.



(d) 3.0 mJ. (e) 5.0 mJ.

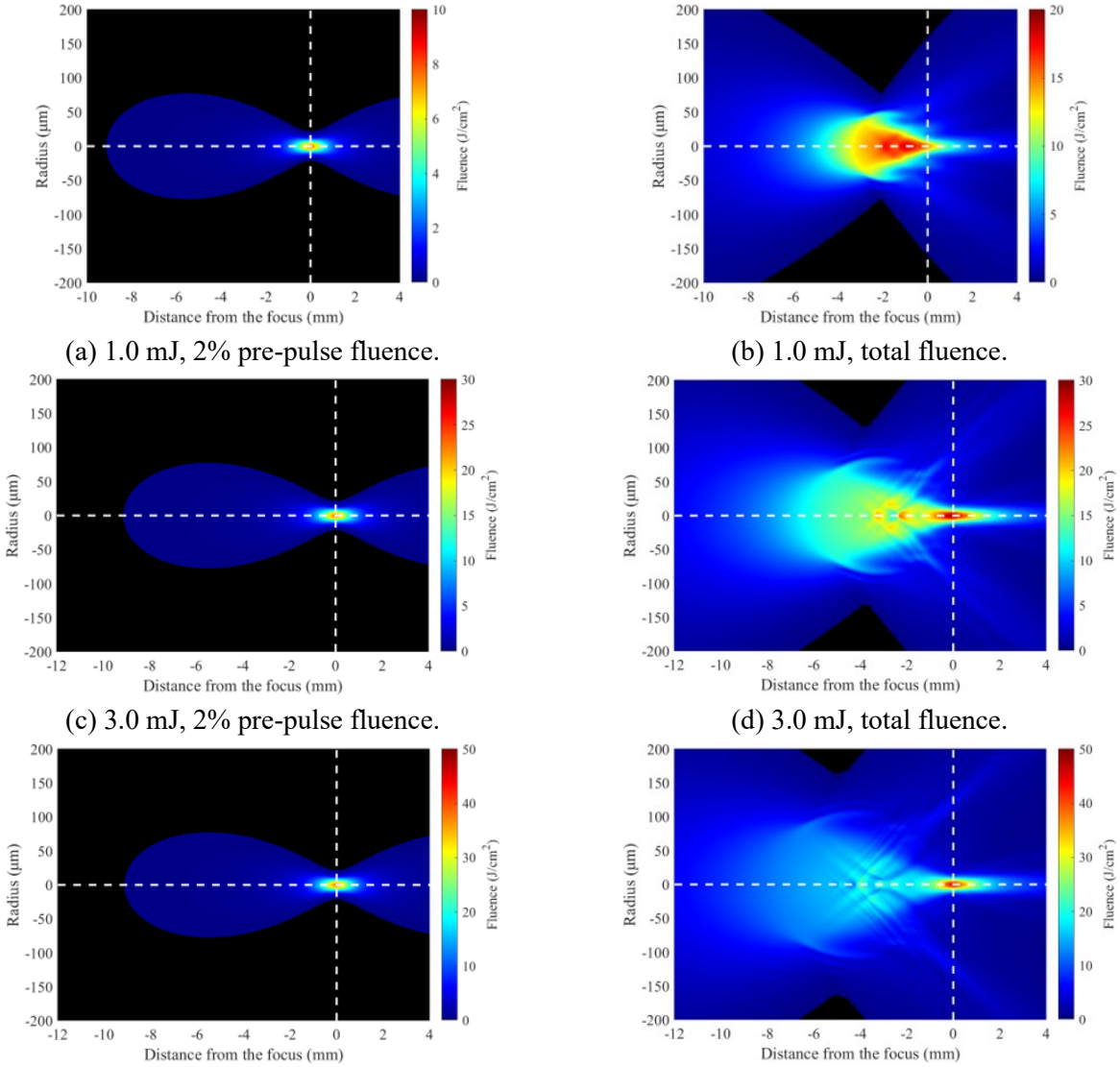
Fig. 5.15 Energy efficiency used for ablation for each pulse energy.

5-5-2　焦点位置近傍のアブレーションに及ぼすプリパルスポストパルスの影響

Fig. 5.5 や Fig. 5.8 に示したように、mJ 以上のパルスエネルギー条件下では、焦点位置において深いアブレーションが得られる。しかしながら、メインパルスの非線形伝搬計算では、焦点位置では微弱なフルエンスが算出される。このことから、焦点位置でのアブレーションはプリパルスによるものである可能性が示唆される。そこで、プリパルスの線形集光時のフルエンス分布を考慮した総合的なフルエンス分布を算出する。本実験におけるプリパルスのコントラストは約 2%であった。プリパルスは 4 つ存在し、それぞれのコントラストは 0.3%、0.4%、0.6%、0.6%であり、微弱なエネルギーであった。したがって、これらのプリパルスは線形に集光すると仮定し、パルスエネルギー1.0 mJ、3.0 mJ、5.0 mJ 条件において、2%のプリパルスによる線形集光時フルエンス分布と、Fig. 5.13 に示したメインパルスの非線形集光時フルエンス分布を合算したフルエンス分布を、それぞれ Fig. 5.16 に示す。各条件でフルエンスのカラースケールが異なることに留意する。

各エネルギーのプリパルス集光時の最大フルエンスはそれぞれ、8 J/cm^2、23 J/cm^2、38 J/cm^2 であった。パルスエネルギーが 1.0 mJ 未満の条件では、プリパルスによるアブレーションは微小で無視できる。1.0 mJ 条件では数 μm のアブレーションが可能なフルエンスとなる。一方、3.0 mJ や 5.0 mJ 条件では、メインパルスの最集光位置のフルエンス（15 J/cm^2）を上回るため、焦点位置で最大のアブレーションが生じる。3.0 mJ、5.0 mJ 条件における焦点位置のアブレーション深さは 10 μm、14 μm であり、これらはプレパルスを含むフルエンス分布と定量的に一致する。また、6%のコントラストのポストパルスが線形に集光した場合、フルエンスは 100 J/cm^2 を超え、第 6 章で示すように 8 回照射あたり 40 μm のアブレーション深さが生じることになる。しかし、実験結果は 10 μm 程度であるため、ポストパルスはメインパルスによって生成されたプラズマによって発散、反射され、金属

表面に到達していないと考えられる。以上より、焦点位置の深いアブレーションはプリパルスによるものである。高パルスエネルギー使用時には、メインパルスとプリパルスのアブレーションを明確に区別する必要がある。



(a) 1.0 mJ, 2% pre-pulse fluence.
(b) 1.0 mJ, total fluence.
(c) 3.0 mJ, 2% pre-pulse fluence.
(d) 3.0 mJ, total fluence.
(e) 5.0 mJ, 2% pre-pulse fluence.
(f) 5.0 mJ, total fluence.

Fig. 5.16 Fluence distribution at linear focusing with a pre-pulse of 2% contrast and total fluence distribution with the main pulse for each pulse energy.

5-5-3　ドライレーザピーニングのレーザ照射パラメータ依存性

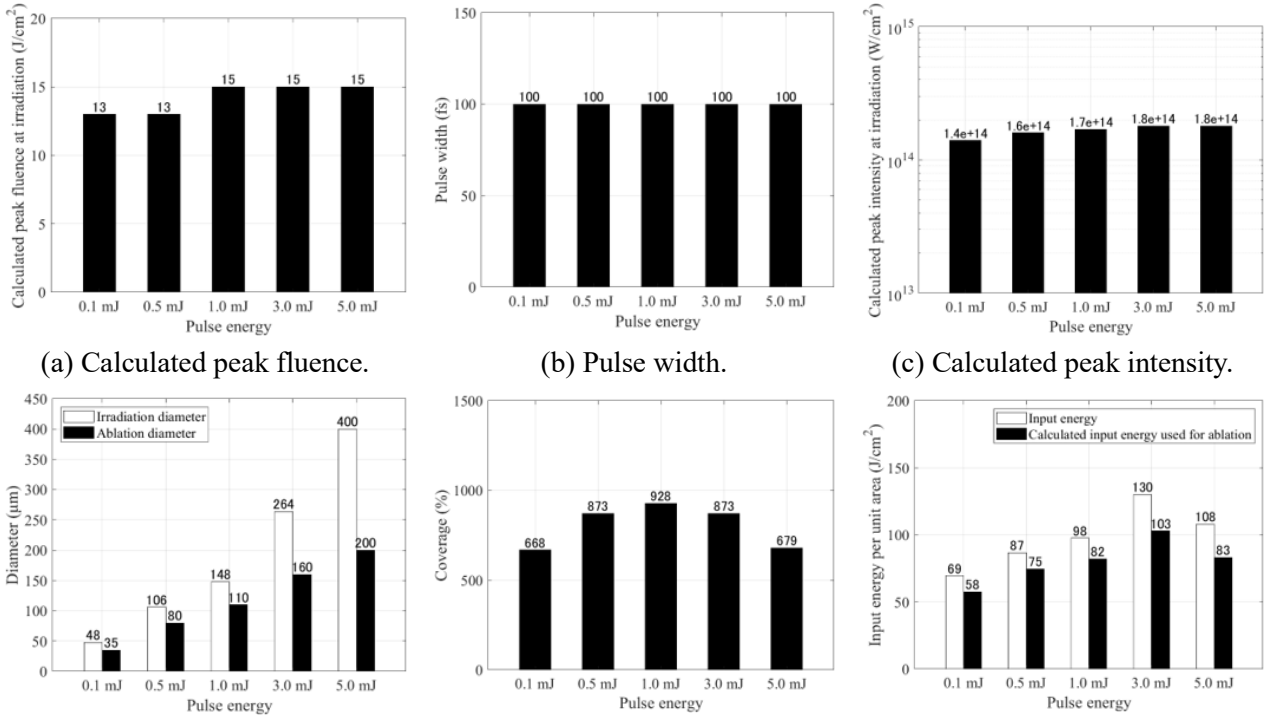
パルスエネルギーごとのピーニング結果を示した Fig. 5.10、Fig. 5.11 において、5.0 mJ 条件を除いて、高パルスエネルギーほど圧縮残留応力付与深さおよび半値全幅増加領域が拡大する傾向が見られた。最も集光する位置では計算上、パルスエネルギーによらずフルエンスは一定である。ただし、アブレーション結果からは、高パルスエネルギー条件では計算結果よりもややフルエンスが低下している可能性がある。これらのピーニング時の各パラメータを Fig. 5.17 に示す。

同程度のフルエンスを持つ条件において、カバレージを統一していることから、試験片全体に投入される単位面積あたりの合計入力エネルギーは 2 倍以内に収まっている。0.1 mJ 条件や 0.5 mJ 条

件などは小さなパルスエネルギーを数多く照射する一方、3.0 mJ 条件や 5.0 mJ 条件は大きなパルスエネルギーを少ない回数照射することになる。圧縮残留応力付与深さと正の相関にあるパラメータは、パルスエネルギー、アブレーション径、そして合計入力エネルギー量の 3 つである。アブレーション径の増加は衝撃波伝搬において有利に働き、小さな衝撃波を繰り返すよりも、大きな衝撃波を付与することが有効であることが示唆される。衝撃波の伝搬については第 6 章で述べるが、衝撃圧力と衝撃波生成領域の大きさに応じて深くまで高い衝撃圧力を伝搬可能となるため[19,20]、同一のフルエンス条件では、アブレーション径に依存したピーニング結果が得られることが説明できる。

一般的に熱影響の少ない超短パルスレーザ加工であっても、高フルエンス条件においてはレーザ照射領域の材料は溶融し、溶融再凝固層が形成される[21]。この領域では引張残留応力が付与される。コーティングなしの水中ナノ秒パルスレーザ照射では、表層に引張残留応力が付与され[22]、その値は照射径に応じて増加することが実測されている[23]。溶融再凝固層の厚みはフェムト秒レーザの場合小さいが、それでも表層の圧縮残留応力は緩和される。したがって、アブレーション径の拡大は、深さ方向への衝撃波伝搬に有効である一方、表層の熱影響の増大を招く。5.0 mJ 条件は弱いレーザ照射領域が広がっており、表層の圧縮残留応力値は降伏応力程度まで導入できていない。したがって、アブレーション径を拡大する際には弱いレーザ照射領域が生じないレーザ集光条件を選定すること、適切な照射間隔、カバレージを探索することが重要である。

一般的に、パルスエネルギーには上限があり、フルエンスの増加とアブレーション径の拡大はトレードオフである。ドライレーザピーニング効果を最大化するために、フルエンスとアブレーション径の関係性は重要であるため、次章でさらに調査する。



(a) Calculated peak fluence.

(b) Pulse width.

(c) Calculated peak intensity.

(d) Irradiation diameter and ablation diameter.

(e) Coverage.

(f) Input energy and calculated input energy used for ablation per unit area.

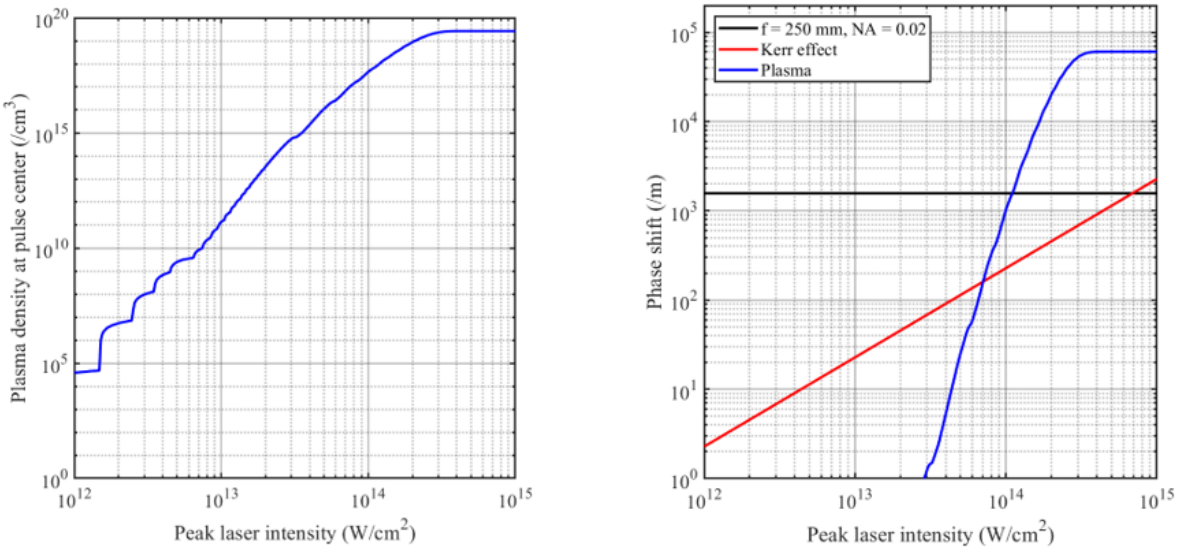
Fig. 5.17 Pulse width dependence of process parameters affecting the peening process.

5-5-4　大気の非線形光学現象のパラメータ化によるレーザ発散時レーザ強度の推定

第 4 章では回折、光カー効果、プラズマによる単位長さあたりの位相変化量を比較することで、パルス中心のレーザが発散するレーザ強度について大まかな予測を立てられることが示された。これらのアプローチは、本実験条件においても適用可能である。第 4 章と同様に、パルス中心のレーザ強度を横軸に取り、発散を考慮せずにパルス前半のレーザ電離によって生成されるプラズマ密度を求める。パルス幅は短いため、衝突電離は無視できる。Fig. 5.18(a)に、パルス幅 100 fs におけるピーク強度に対応するプラズマ密度を示す。ここでは一価の電離のみを考えるため、レーザ強度が 2×10^{14} W/cm^2 でプラズマ密度は飽和する。このレーザ強度とプラズマ密度を用いて、単位伝搬長さあたりの位相変化量を算出した結果を Fig. 5.18(b)に示す。

回折による位相変化量は、本実験で用いたレーザ装置の初期ビーム径と焦点距離 250 mm のレンズから求めた。レーザ強度が 7×10^{13} W/cm^2 程度で、光カー効果とプラズマによる位相変化量が等しくなる。この位相変化量は回折による位相変化量に比べて一桁程度小さいため、光カー効果とプラズマによる Intensity clamping は生じない。レーザ強度が 1.0×10^{14} W/cm^2 程度に達すると、回折による位相変化量とプラズマによる位相変化量が同じ大きさとなる。回折とプラズマデフォーカシングは同じ作用を持つため、このレーザ強度で飽和を生じることはないが、両者が同程度の影響力でレーザ中心の波面を進めることを示している。

レーザ強度が 2×10^{14} W/cm^2 に達すると、回折による位相変化量の 10 倍となるため、レーザは即座に発散することが予測され、最集光時のレーザ強度は 1.0×10^{14} W/cm^2 から 2.0×10^{14} W/cm^2 の範囲に収まると考えられる。この結果は、非線形伝搬計算による飽和レーザ強度に一致する。以上より、単位長さあたりの位相変化量を用いることで、レーザ集光時の強度やフルエンスを予測可能である。



(a) The amount of plasma generated in relation to the peal laser intensity.

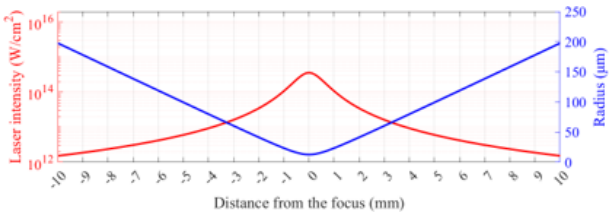
(b) The phase change per unit length.

Fig. 5.18 Relationship between diffraction, Kerr effect, and phase change per unit length of plasma under conditions of 100 fs pulse width.

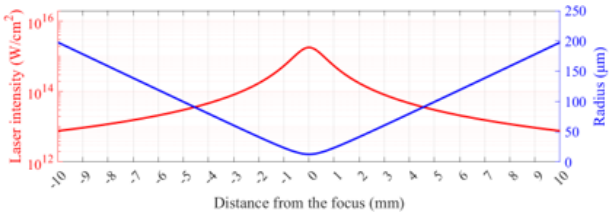
5-5-5　大気の非線形光学現象のパラメータ化によるレーザ発散位置の推定

5-5-4の位相変化量パラメータをガウシアンレーザの線形集光時の強度分布上で比較することで、レーザ発散を開始する位置の予測が可能である。パルスエネルギー0.1 mJ、0.5 mJ、1.0 mJ、3.0 mJ、5.0 mJ 条件の線形集光時の強度分布を Fig. 5.19(a)-(e)に、レーザ強度に対応するプラズマ密度を算出し、位相変化量パラメータに変換した結果を Fig. 5.19(f)-(j)に示す。レーザ集光過程で回折による位相変化量パラメータとプラズマ散乱による位相変化量パラメータの交点が生じる条件では、レーザ発散が開始する位置を算出することができる。パルスエネルギー0.1 mJ 条件では上流 1.0 mm、0.5 mJ 条件では上流 2.5 mm、1.0 mJ 条件では上流 3.6 mm、3.0 mJ 条件では上流 6.3 mm、5.0 mJ 条件では上流 8.2 mm である。これらの位置で、レーザ中心部の強度分布は非線形な変化が顕著に生じ始めると言える。

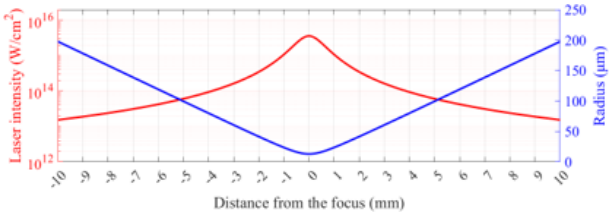
また、4-5-4 節と同様に、上流側で残存する位相差を、線形集光を仮定した回折と光カー効果とプラズマ散乱によって減少させる過程を考える。ビーム半径位置とビーム半径の 2 倍の位置の位相差を積算した結果をそれぞれ、Fig. 5.20(a)-(e)、Fig. 5.20(f)-(j)に示す。回折のみを考慮した残存位相差は直線となり、焦点位置でゼロとなる。回折と光カー効果を考慮した残存位相差は、上流側でほとんど変化せず、光カー効果の寄与が小さいことを表す。焦点位置付近で光カー効果の影響が大きくなるが、実際には上流側でレーザは発散するため、意味を持たないグラフである。回折とプラズマ散乱を考慮した残存位相差は、上流側で顕著な変化が生じる。変化が生じ始めるレーザ強度や集光軸での位置は、Fig. 5.18(b)と Fig. 5.19(f)-(j)に一致する。プラズマ散乱により残存位相差がゼロとなり、レーザ発散が表現されている。ビーム半径位置のレーザ発散位置は Fig. 5.19(f)-(j)の位置よりも後方となり、パルスエネルギー0.1 mJ 条件では上流 0.7 mm、0.5 mJ 条件では上流 2.5 mm、1.0 mJ 条件では上流 2.8 mm、3.0 mJ 条件では上流 5.0 mm、5.0 mJ 条件では上流 6.4 mm である。この位置では、パルスエネルギーの大部分を占めるレーザ中心部分の発散が進み、最大レーザ強度が低下し始めると考えられる。非線形伝搬計算により算出されたフルエンス分布である Fig. 5.13 もこれらの位置でフルエンス分布に非線形な変化が生じており、現象を良く記述できている。この位置での線形集光時のレーザ強度はパルスエネルギー0.1 mJ 条件では 1.7×10^{14} W/cm^2、0.5 mJ 条件では 1.2×10^{14} W/cm^2、1.0 mJ 条件では 1.9×10^{14} W/cm^2、3.0 mJ 条件では 1.8×10^{14} W/cm^2、5.0 mJ 条件では 1.9×10^{14} W/cm^2 であり、飽和レーザ強度の推定に用いることができる。この推定からも、パルスエネルギーの増加がレーザ強度を高めないことが明らかである。また、ビーム半径の 2 倍の位置のレーザ発散位置はパルスエネルギー0.1 mJ 条件では上流 0.5 mm、0.5 mJ 条件では上流 1.6 mm、1.0 mJ 条件では上流 2.4 mm、3.0 mJ 条件では上流 4.2 mm、5.0 mJ 条件では上流 5.4 mm である。この位置では、パルス中心の外周部も含めて、レーザ発散に転じることを表すと考えられる。非線形伝搬計算により算出されたフルエンス分布である Fig. 5.13 もおよそこれらの位置で発散が生じており、現象を良く記述できている。この推定からも、パルスエネルギーの増加により、より上流側でのレーザ発散が生じることが明らかである。このように、非線形伝搬計算なしに飽和レーザ強度やレーザ発散位置の予測が可能である。また、これらは線形現象と非線形現象の境界を提示できる知見となりうる。



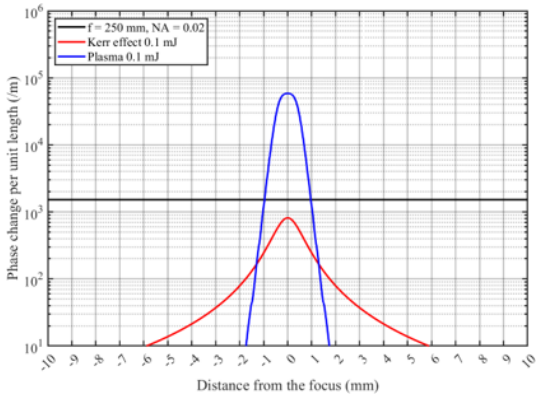
(a) 0.1 mJ.



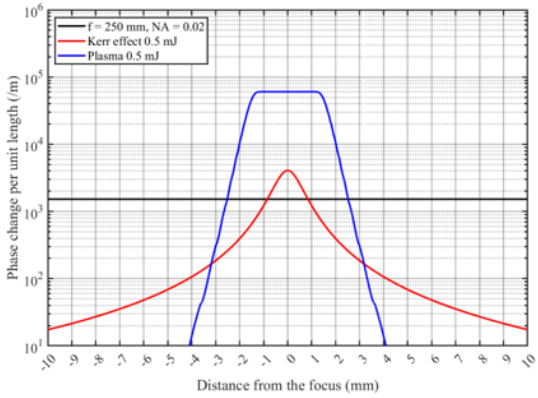
(b) 0.5 mJ.



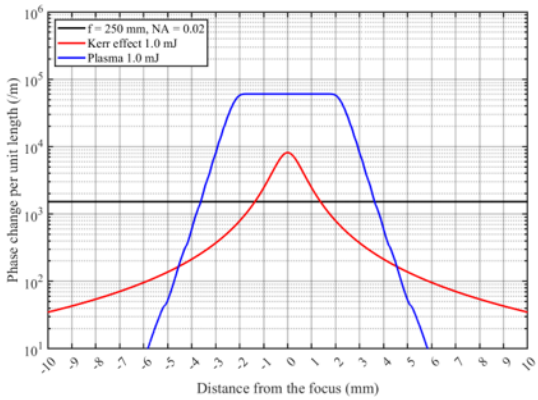
(c) 1.0 mJ.



(f) 0.1 mJ.

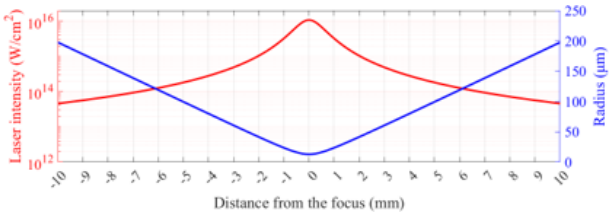


(g) 0.5 mJ.

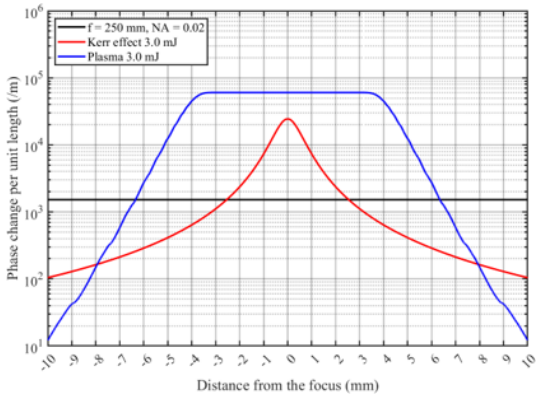


(h) 1.0 mJ.

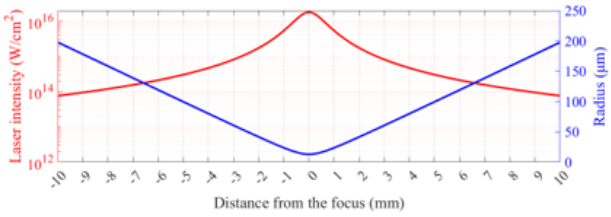
Fig. 5.19 (a)-(e) Intensity distribution at linear Gaussian focusing for each pulse energy. (f)-(j) Relation between phase change parameter of diffraction, phase change parameter of Kerr effect, and phase change parameter of plasma calculated from the intensity distribution at linear Gaussian focusing for each pulse energy.



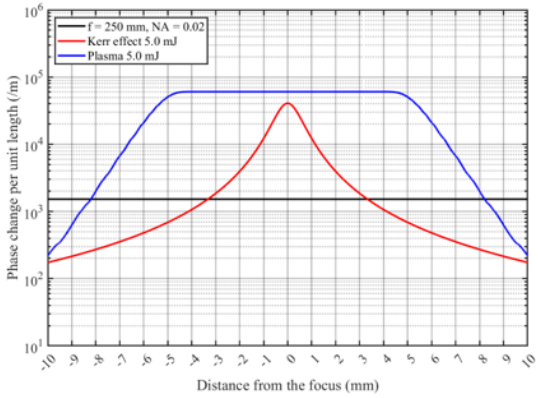
(d) 3.0 mJ.



(i) 3.0 mJ.

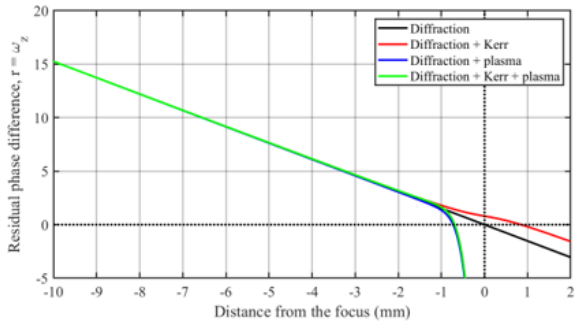


(e) 5.0 mJ.

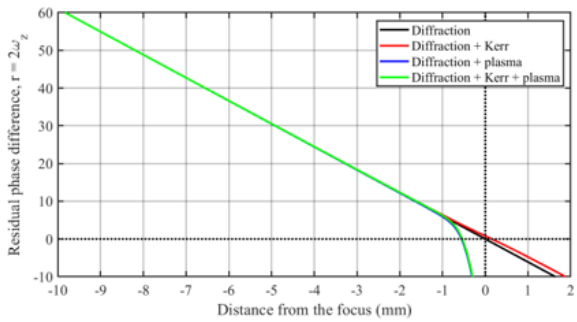


(j) 5.0 mJ.

Fig. 5.19 Continued.

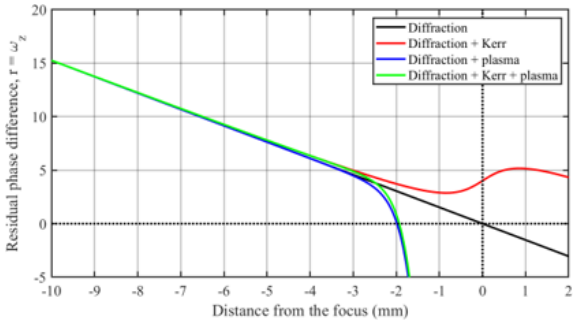


(a) 0.1 mJ.

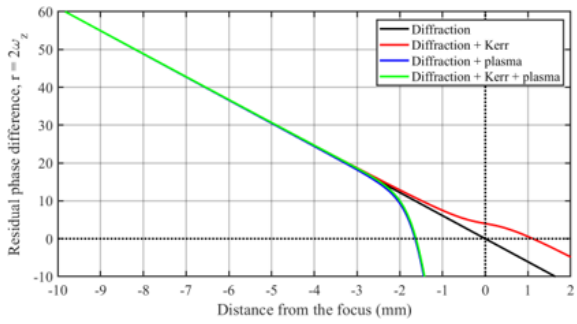


(f) 0.1 mJ.

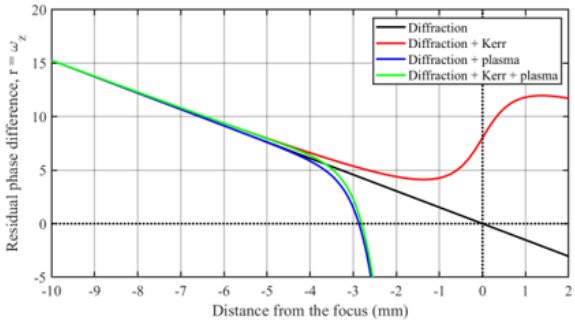
Fig. 5.20 (a)-(e) Residual phase difference at each position of the laser focus axis, taking into account diffraction, optical Kerr effect, and plasma defocusing at the beam radius position for each pulse energy. (f)-(j) Residual phase difference at each position of the laser focus axis, taking into account diffraction, optical Kerr effect, and plasma defocusing at twice the beam radius position for each pulse energy.



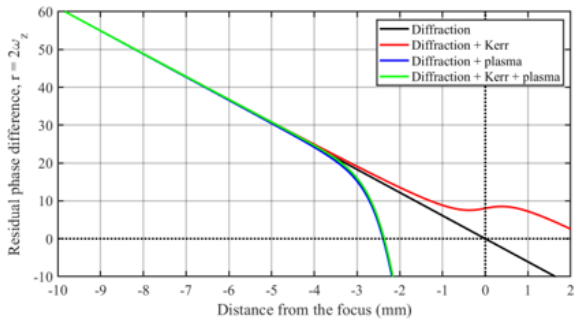
(b) 0.5 mJ.



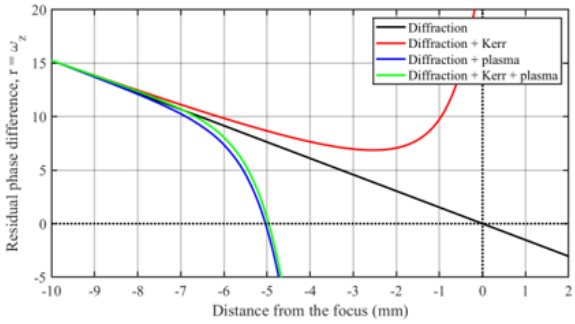
(g) 0.5 mJ.



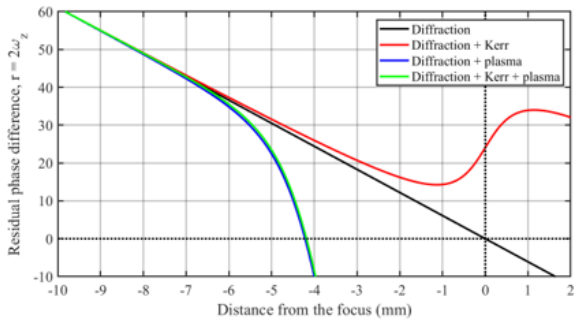
(c) 1.0 mJ.



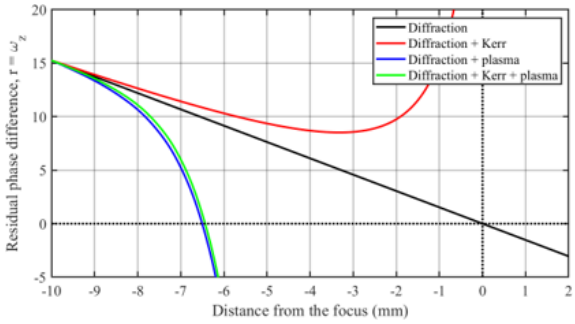
(h) 1.0 mJ.



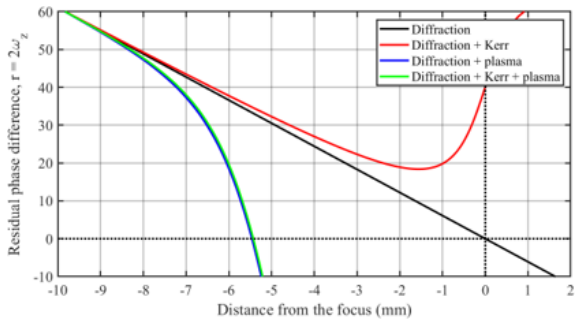
(d) 3.0 mJ.



(i) 3.0 mJ.



(e) 5.0 mJ.



(j) 5.0 mJ.

Fig. 5.20 Continued.

大気中では、非線形光学現象の影響により、フルエンスには集光条件に応じた上限が存在することが示された。しかし、パルス幅を伸ばさずに高いフルエンスを照射する方法は二つある。一つ目は、施工雰囲気の変更である。大気の非線形光学現象の影響を避けるために、真空中での実験は有効である。真空中では、光は線形集光が可能であり、大気中よりも二桁以上高いフルエンスでのレーザ照射が可能である。大気圧を 1/10 程度に減圧するだけでもプラズマ散乱による位相変化量パ

ラメータは 1/10 になるため、同じ開口数を用いてもより高いフルエンスを照射することができると考えられる。また、ヘリウムガスなどの電離閾値の高い希ガスをシールドガスとして使用することで、大気中よりも一桁弱高いレーザ強度を得ることができる[5]。このように、施工雰囲気の変更は金属へのレーザ照射時の強度やフルエンスを向上させる手段となる。

二つ目は、開口数を高めることである。Fig. 5.21 に、さまざまな焦点距離を用いた際の位相変化量を示す。大気圧条件下でも、初期ビーム半径 5 mm に対して焦点距離 40 mm のレンズを使用すると、回折による位相変化量とプラズマによる位相変化量が同程度となる。したがって、焦点距離をさらに短い 30 mm や 20 mm のレンズを用いて、回折による位相変化量がプラズマによる変化量を大きく上回ることで、レーザ発散の影響を最小限に抑えることができると考えられる。

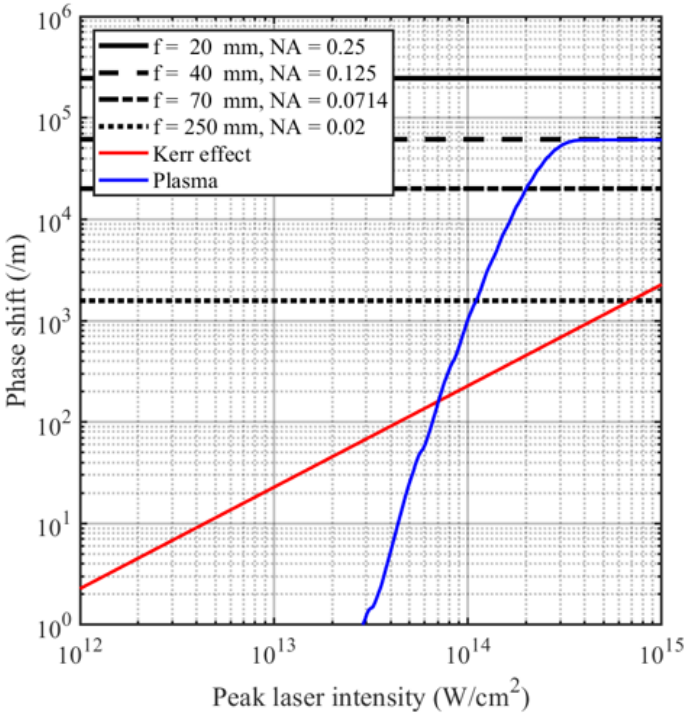


Fig. 5.21 Relationship between diffraction, Kerr effect, and phase change per unit length of plasma under various focusing conditions for 100 fs pulse width.

5-6 結言

本章では、大気の電離閾値を超える強度、フルエンス領域におけるレーザ集光特性およびピーニング加工特性のパルスエネルギー依存性に関する研究を行い、以下の結果を得た。

1. 大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ加工では、大気の存在によって照射痕が拡大されており、レーザ発散が生じることが示された。集光条件とパルス幅が同一条件において、パルスエネルギーの大きな条件ほど、レーザ集光位置は上流側にシフトした。パルスエネルギーを 0.1 mJ から 5.0 mJ に増加させても、最集光位置でのアブレーション深さは増加せず、そのかわりにアブレーション径の拡大が観察された。
2. 大気の非線形光学現象を考慮したレーザ伝搬計算により、レーザは焦点位置よりも上流側で発散することが示された。パルスエネルギーを増加させても、レーザ集光時の最大フルエンスは高まらず、数 mJ 級のパルスエネルギーでは、線形集光時のフルエンスよりも二桁以上小さなフ

ルエンスとなり、アブレーション深さは理想的な集光条件よりも著しく低下した。計算されたフルエンス分布は実験結果のアブレーション領域推移と良く一致した。

3. 高パルスエネルギー条件において、コントラスト 2%のプリパルスは線形に集光可能であるために、焦点位置でメインパルスよりも高いフルエンスを形成することが示された。焦点位置での深いアブレーションはメインパルスによるものではなく、プリパルスによるものであり、高パルスエネルギー条件ではそれらの区別を明確にする必要がある。ポストパルスはメインパルスによって生成された大気プラズマや金属プラズマによって発散されると考えられた。
4. 焦点位置でのピーニングを行った結果、ピーニング効果は著しく低下した。焦点位置ではプレパルスによる微弱な衝撃加工となるためと考えられた。メインパルスが最も集光する位置に照射位置を制御することにより、適切なピーニング効果を得ることができた。
5. それぞれのパルスエネルギーで照射位置制御を行ったピーニングにおいて、カバレージや合計入力エネルギー量がおよそ一定の条件下で、パルスエネルギーの大きな条件では圧縮残留応力付与深さが増加した。合計入力エネルギーが同程度でも、そのエネルギーを大きな面積で一度に投入することによってピーニング効果が増加することが示された。また、圧縮残留応力計測時の半値全幅も同様に増加した。半値全幅は、フェムト秒レーザ衝撃波による塑性変形量の指標として扱うことができ、衝撃波伝搬深さおよびピーニング効果付与深さがアブレーション径に依存することを示唆する。
6. 本実験条件のように大気の電離閾値を超えるレーザ強度に達するレーザ集光条件では、パルスエネルギー増加に伴いアブレーションのエネルギー効率は減少する。パルス幅 100 fs、5 mJ のパルスエネルギー条件では、大気の非線形光学現象は顕著であり、照射位置制御を行っても加工には不適切であった。集光条件に応じて、加工に適切なパルスエネルギーには上限が生じると考えられた。
7. 回折や大気の非線形光学現象の単位伝搬長さあたりの位相変化量の考察から、本実験条件におけるレーザ発散時のレーザ強度やフルエンスなどの集光特性を見積もることができた。大気の電離閾値を超える条件でのレーザ集光において、パルスエネルギーの増加はレーザ発散時のレーザ強度を高められず、一定であることが示された。
8. 集光レンズによって与えられる位相差を、単位伝搬長さあたりの位相変化量を用いて減少する過程を考えることで、レーザ発散が開始する位置やレーザ発散が完了する位置、飽和レーザ強度の推定が可能であることが示された。これらは大気の電離閾値を超える強度、フルエンス領域の超短パルスレーザ加工におけるレーザパラメータ選定に貢献する。
9. アブレーションのエネルギー効率を下げずに大きなパルスエネルギーを扱うためには、施工雰囲気を変更することや開口数を高めることが有効である。これにより、一般的に大気の電離閾値 10^{14} W/cm^2 に制約されるレーザ強度を上回る強さのレーザを照射可能となると考えられる。

参考文献

[1] T. Sano, T. Eimura, R. Kashiwabara, T. Matsuda, Y. Isshiki, and A. Hirose, “Femtosecond laser peening of 2024 aluminum alloy without a sacrificial overlay under atmospheric conditions”, J. Laser Appl., Vol. 29, No. 012005 (2017).

[2] X. Zhao, and Y. C. Shin, “Femtosecond laser ablation of aluminum in vacuum and air at high laser intensity,” Appl. Sur. Sci., Vol. 283, pp. 94-99 (2013).

[3] C. Pasquier, P. Brandin, R. Clady, N. Sanner, M. Sentis, O. Utéza, Yu. Li, and S. Y. Long, “Handling beam propagation in air for nearly 10-fs laser damage experiments,” Opt. Commun., Vol. 355, pp. 230-238 (2015).

[4] C. Pasquier, M. Sentis, O. Utéza, and N. Sanner, “Predictable surface ablation of dielectrics with few-cycle laser pulse even beyond air ionization,” Appl. Phys. Lett., Vol. 109, No. 051102 (2016).

[5] J. Sun and J. P. Longtin, “Effects of a gas medium on ultrafast laser beam delivery and materials processing,” J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 21, No. 5, pp. 1081-1088 (2004).

[6] S. R. Vatsya, C. Li, and S. K. Nikumb, “Surface profile of material ablated with high-power lasers in ambient air medium,” J. Appl. Phys., Vol. 97, No. 034912 (2005).

[7] C. Li, S. R. Vatsya, and S. K. Nikumb, “Effect of plasma on ultrashort pulse laser material processing,” J. Laser Appl., Vol. 19, No. 1, pp. 26-31 (2007).

[8] R. Yamada, W. Komatsubara, H. Sakurai, K. Konishi, N. Mio, J. Yumoto, and M. Kuwata-Gonokami, “Simulation of nonlinear propagation of femtosecond laser pulses in air for quantitative prediction of the ablation crater shape,” Opt. Exp., Vol. 31, No. 5, pp. 7363-7382 (2023).

[9] P. J. Wrzesinski, D. Pestov, V. V. Lozovoy, J. R. Gord, M. Dantus, and S. Roy, “Group-velocity-dispersion measurements of atmospheric and combustion-related gases using an ultrabroadband-laser source,” Opt. Exp., Vol. 19, No. 6, pp. 5163-5170 (2011).

[10] E. T. J. Nibbering, G. Grillon, M. A. Franco, B. S. Prade, and A. Mysyrowicz, “Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N_2, and O_2 by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses,” J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 14, No. 3, pp. 650-660 (1997).

[11] A. Couairon, and A. Mysyrowicz, “Femtosecond filamentation in transparent media,” Phys. Rep., Vol. 441, pp. 47-189 (2007).

[12] H. Kiriyama, “Temporal Contrast Improvement in the J-KAREN-P Laser”, J. Plasma Fusion Res., Vol. 97, No. 3, pp. 145-147 (2021).

[13] G. K. Williamson, and W. H. Hall, “X-ray line broadening from field aluminium and wolfram”, Acta. Metall., Vol. 1, No. 22 (1953).

[14] G. K. Williamson, and R. E. Smallman, “Dislocation densities in some annealed and cold-worked metals from measurements on the X-ray Debye-Scherrer spectrum”, Philosophical Magazines, Vol. 8, pp. 34-46 (1956).

[15] M. Munther, T. Martin, A. Tajyar, L. Hackel, A. Becheshti, and K. Davami, “Laser shock peening and its effects on microstructure and properties of additively manufactured metal alloys: a review”, Eng., Res., Express, Vol. 2, No. 022001 (2020).

[16] C. Samuel, A. Moganraj, S. Swaroop, K. Praveenkumar, A. Natarajan, M. N. Rao, B. Syed, and B.

Bhattacharya, “Effect of Laser Shock Peening without Coating on Grain Size and Residual Stress Distribution in a Microalloyed Steel Grade”, Crystals, Vol. 13, No. 212 (2023).

[17] T. Matsuda, T. Sano, K. Arakawa, and A. Hirose, “Dislocation structure produced by an ultrashort shock pulse”, J. Appl. Phys., Vol. 116, No. 183506 (2014).

[18] T. Matsuda, T. Sano, K. Arakawa, and A. Hirose, “Multiple-shocks induced nanocrystallization in iron”, Appl. Phys. Lett., Vol. 105, No. 021902 (2014).

[19] S. Nakazawa, S. Watanabe, Y. Iijima, and M. Kato, “Experimental Investigation of Shock Wave Attenuation in Basalt”, Icarus, Vol. 156, pp. 539-550 (2002).

[20] V. V. Shepelev, Yu. V. Petrov, N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, E. A. Perov, and S. V. Fortova, “Attenuation and inflection of initially planar shock wave generated by femtosecond laser pulse”, Opt. Laser Technol., Vol. 152, No. 108100 (2022).

[21] C. Momma, S. Norte, B. N. Chichkov, F. von Alvecnsleben, A. Tünnermann, H. Welling, and B. Wellegehausen, “Short-pulse laser ablation of solid targets”, Opt. Commun., Vol. 129, No. 134 (1996).

[22] J. Kaufman, Z. Špirit, V. K. Vasudevan, M. A. Steiner, S. R. Mannava, J. Brajer, L. Pina, and T. Mocek, “Effect of Laser Shock Peening Parameters on Residual Stresses and Corrosion Fatigue of AA5083”, Metals, Vol. 11, No. 1635 (2021).

[23] Y. Sano, K. Akita, and T. Sano, “A Mechanism for Inducing Compressive Residual Stresses on a Surface by Laser Peening without Coating”, metals, Vol. 10, No. 816 (2020).

第 6 章　高開口数を用いた高フルエンス領域超短パルスレーザ加工

6-1　緒言

第 3 章では、超短パルスレーザ加工のパルス幅依存性について調査した。パルス幅がピコ秒以上の場合、熱影響が生じるため、100 fs 程度の短いパルス幅を活用することが望ましい。第 5 章では、焦点距離 250 mm レンズで 100 fs のパルスレーザを集光し、集光特性や加工特性に及ぼすパルスエネルギー依存性を明らかにした。数 mJ の高パルスエネルギーを扱う場合、弱い開口数では最大フルエンスが小さく、低フルエンスな照射領域も広く存在し不適切である。したがって、短いパルス幅と高パルスエネルギーを扱う場合、開口数を高める方法が有効である。さらに、第 4 章の考察により、大気プラズマの飽和した位相変化量を上回る開口数条件を用いることで、大気プラズマによるレーザ発散現象を上回り集光し、大気の電離閾値を一桁以上上回るレーザ強度を得られる可能性がある。先行研究のドライレーザピーニング加工は、レーザ発散現象によりレーザ強度が 2×10^{14} W/cm^2 以下に制約されている。高いレーザ強度条件によるレーザピーニング加工は未実施であり、その結果は非常に興味深い。

また、ピーニング加工においては、同等のフルエンス条件でもアブレーション径の拡大によりピーニング効果付与領域を深くできることが示唆された。したがって、フルエンス増加とアブレーション径拡大はともにピーニング加工の改善に有効である。ただし、レーザ装置ごとに扱えるパルスエネルギーには上限があるため、フルエンスとアブレーション径の大きさはトレードオフの関係にある。開口数条件を調節することにより、ピーニング加工に及ぼすフルエンスとアブレーション径の影響を明らかにし、単一のパルスエネルギーに対して最適なフルエンスとアブレーション径を調査することが望ましい。

本研究では、様々なレーザ集光条件での実験を行い、レーザ集光時のフルエンス分布や最大フルエンスに関する知見を得る。また、異なるフルエンスとアブレーション径の条件でドライレーザピーニング加工を実施し、ピーニング効果に及ぼすフルエンスとアブレーション径の影響を明らかとする。さらに、衝撃波伝搬現象の観点から、ピーニング効果付与深さについて言及し、超短パルスレーザ衝撃加工の最適条件を見出す。

6-2　実験・計算方法

6-2-1　供試材料

本研究では、アルミニウム合金 A2024-T351 を試験片として用いた。ピーニングに用いた A2024-T351 の化学組成を Table 6.1 に、機械的性質を Table 6.2 に示す。第 5 章で用いた試験片とは異なるが、性質は同等である。A2024-T351 試験片は 1 辺 10 mm の立方体である。レーザ照射の前処理として、耐水研磨紙#2000 による研磨後、粒径 1 μm のダイヤモンド粒子を用いたバフ研磨を行った。

Table 6.1 Chemical compositions (wt.%) of the 2024-T351 aluminum alloy.

Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
0.042	0.083	4.558	0.627	1.563	0.002	0.075	0.025	Bal.

Table 6.2 Mechanical properties of A2024-T351.

0.2% proof stress (MPa)	Tensile strength (MPa)	Elongation (%)
316	469	18.9

6-2-2　レーザ照射条件、レーザ加工条件

本章で用いた超短パルスレーザ装置は、Spectra physics, Inc 製の Solstice Ace である。中心波長は 800 nm、ビーム径（レーザ強度が$1/e^2$となる半径）は 5.0~5.5 mm、最大パルスエネルギーは 6.4 mJ、最小パルス幅は半値全幅で約 100 fs である。最大繰り返し周波数は 1 kHz である。第 5 章の議論に基づき、最大フルエンスを増加させるために開口数を高める。焦点距離 30 mm、20 mm の 2 つのレンズを用いた。焦点距離 30 mm は球面平凸レンズ、焦点距離 20 mm は球面収差補正された対物レンズを用いた。球面平凸レンズは直径 18 mm であり、対物レンズの入射口径は 10.4 mm であった。対物レンズを使用した場合、レーザ外周部の一部は通過できないことに留意する。また、焦点距離 100 mm の球面平凸レンズを用いて、球面収差の影響下でのレーザ照射も行った。適切なレーザ照射条件となるいくつかの条件において、第 5 章と同様にピーニング加工を行った。また、本実験時のプリパルスは計測できないほど小さく、ポストパルスのコントラストは 6%程度であった。

6-2-3　レーザ顕微鏡によるアブレーション観察

開口数を変更した各レーザ照射条件において、アブレーション深さ測定を行った。測定にはレーザ顕微鏡（キーエンス製、VK-9700）を用いた。測定時の倍率は 20 倍または 50 倍とし、平面方向の分解能は 0.2913 μm であり、深さ方向のピッチは 0.02 μm とした。1 回の照射ではアブレーション深さが小さく、計測誤差が大きいため、8 回照射時の観察を行った。アブレーション分布はレーザ顕微鏡によって取得されたデータを、試験片の傾きを補正して求めた。

6-2-4　cosα 法による残留応力の深さ方向分布計測

フルエンスやアブレーション径が試験片表層および内部の応力状態に及ぼす影響を評価するために、ドライレーザピーニング後の試験片に対して、cosα 法による残留応力測定を行った。残留応力測定には X 線残留応力装置（パルステック製、μ-X360s）を用いた。本実験では、波長 2.2897 Å である Cr 管球の Kα 線を試料表面に対し、25 degree で入射し、解析に使用する回折面を(311)面として測定を行った。ヤング率は 69.31 GPa、ポアソン比は 0.348 とした。また、ドライレーザピーニングを施した試料に対して、電解研磨と X 線残留応力測定を交互に繰り返し、深さ方向の残留応力分布を破壊的に求めた。電解研磨には鉄鋼・ステンレスの他、アルミニウムにも使用可能な中性の電解液であるマイトスケーラ液 SUSμX360 を用いた。

6-2-5　球面収差を考慮した線形集光計算方法

焦点距離の短い球面レンズを使用する場合、レンズが厚いため、径の大きなレーザでは球面収差を無視できない。球面収差が生じる条件下での線形集光時のフルエンス分布を正確に理解するためには、レンズによる位相変化に近軸近似を適用せずに取り扱う必要がある。具体的には、2-11 で示

したレンズの位相項を付与する際に、(2.267)式ではなく、(2.266)式を使用して計算する。この場合、理想的なガウシアン分布レーザ集光時の伝搬解は成立しない。レーザ装置 Solstice のビーム径においては、150 mm 以下の焦点距離を持つ球面平凸レンズ使用時に球面収差の影響が顕著となる。

球面収差を含めた線形集光計算を以下に説明する。レーザ自由伝搬解である(2.261)式に対し、レンズによる位相変化の項を積する。レンズを通過する位置をz_lとすると、

$$A(r,z) = B_0 \frac{\omega_{r,0}}{\omega_r(z)} exp\left\{-\frac{r^2}{\omega_r^2(z)}\right\} exp\left\{\frac{ik_0}{2R(z)} r^2\right\} exp\{i\eta(z)\} exp\left\{ik_0\left(1-n_g\right)\left(R_l - \sqrt{R_l^2 - \rho^2}\right)\right\} \quad (6.1)$$

これを初期条件として、線形伝搬方程式を解くことで伝搬時の変化を記述できる。しかしながら、レンズ設置位置から焦点位置後方までのパルス伝搬を計算する場合、半径方向にビーム径の数倍以上の範囲、集光時ビーム径の 1/10 以下の半径刻み幅が必要となり、計算コストが非常に高くなる。

そこで、パルス内のレーザはパルス内時間によらず線形に集光するため、代表してパルス中心についてのみ計算を行うことで、計算コストを大幅に削減できる。パルス中心のみの伝搬を計算する方法として、フーリエ変換を用いる。線形の伝搬方程式として(2.237)式の近軸 Helmholtz 方程式を変形すると、

$$\frac{\partial A}{\partial z} = \frac{i}{2k_0}\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right) A \quad (6.2)$$

関数$f(x,y)$とそのフーリエ変換$F(\xi,\eta)$の関係は次のように定義できる。

$$F(\xi,\eta) = \mathcal{F}[f(x,y)] = \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} f(x,y) e^{2\pi i(\xi x + \eta y)} dxdy \quad (6.3)$$

$$f(x,y) = \mathcal{F}^{-1}[F(\xi,\eta)] = \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} F(\xi,\eta) e^{-2\pi i(\xi x + \eta y)} d\xi d\eta \quad (6.4)$$

ξ,ηはそれぞれx,y空間の波数である。(6.2)式の両辺をx,y方向の二次元フーリエ変換する。

$$\mathcal{F}\left[\frac{\partial A(x,y,z)}{\partial z}\right] = \frac{\partial \hat{A}(\xi,\eta,z)}{\partial z} \quad (6.5)$$

$$\mathcal{F}\left[\frac{\partial^2 A(x,y,z)}{\partial x^2}\right] = \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\partial^2 A(x,y,z)}{\partial x^2} e^{2\pi i(\xi x + \eta y)} dxdy \quad (6.6)$$

(6.6)式のxの定積分は部分積分を用いて計算し、

$$\begin{aligned}\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\partial^2 A(x,y,z)}{\partial x^2} e^{2\pi i(\xi x + \eta y)} dx &= \left[\frac{\partial A(x,y,z)}{\partial x} e^{2\pi i(\xi x + \eta y)}\right]_{-\infty}^{\infty} - 2\pi i\xi \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\partial A(x,y,z)}{\partial x} e^{2\pi i(\xi x + \eta y)} dx \\ &= -2\pi i\xi \left\{\left[A(x,y,z) e^{2\pi i(\xi x + \eta y)}\right]_{-\infty}^{\infty} - 2\pi i\xi \int_{-\infty}^{\infty} A(x,y,z) e^{2\pi i(\xi x + \eta y)} dx\right\} \\ &= 4\pi^2\xi^2 \int_{-\infty}^{\infty} A(x,y,z) e^{2\pi i(\xi x + \eta y)} dx \end{aligned} \quad (6.7)$$

式変形の過程で、電場の複素振幅$A(x,y,z)$はx方向の無限大でゼロであることを用いた。これを(6.6)式に代入することにより、

$$\mathcal{F}\left[\frac{\partial^2 A(x,y,z)}{\partial x^2}\right] = 4\pi^2\xi^2 \int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} A(x,y,z)e^{2\pi i(\xi x+\eta y)}dxdy = 4\pi^2\xi^2\hat{A}(\xi,\eta,z) \tag{6.8}$$

y方向も同様に求められ、

$$\mathcal{F}\left[\frac{\partial^2 A(x,y,z)}{\partial x^2}\right] = 4\pi^2\eta^2\hat{A}(\xi,\eta,z) \tag{6.9}$$

(6.5),(6.8),(6.9)式より、(6.2)式の両辺を二次元フーリエ変換した式は次のようになる。

$$\frac{\partial\hat{A}(\xi,\eta,z)}{\partial z} = \frac{2\pi^2 i}{k_0}(\xi^2+\eta^2)\hat{A}(\xi,\eta,z) \tag{6.10}$$

これは伝搬z方向について解を求めることができ、

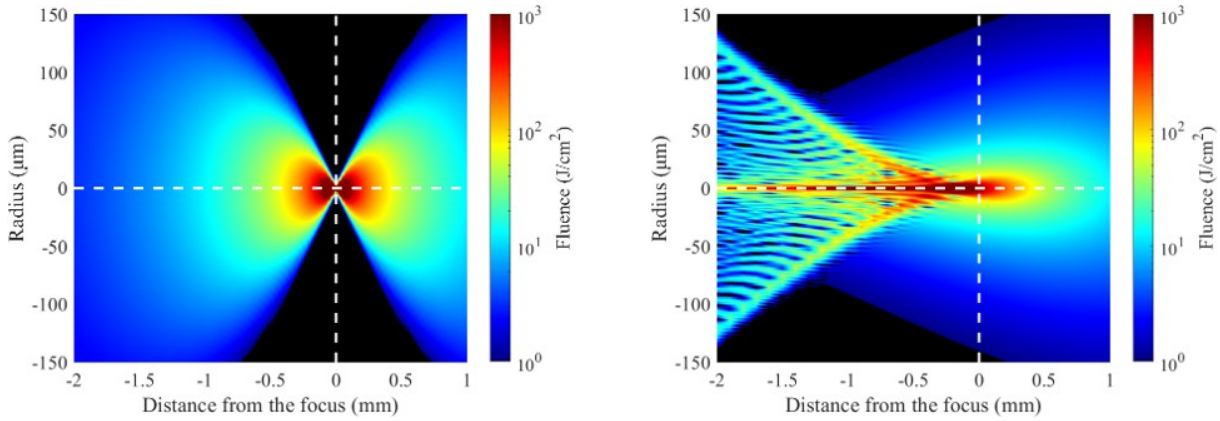
$$\hat{A}(\xi,\eta,z) = \hat{A}(\xi,\eta,0)\,exp\left\{\frac{2\pi^2 i}{k_0}(\xi^2+\eta^2)z\right\} \tag{6.11}$$

すなわち、初期条件を二次元フーリエ変換した関数$\hat{A}(\xi,\eta,0)$に、任意の位置zに対応した項を積することで、位置zにおける波数空間における解$\hat{A}(\xi,\eta,z)$が求められる。これを逆二次元フーリエ変換することで、位置zにおける(x,y,z)空間における解$A(x,y,z)$が求まる。この手法を用いることで、線形伝搬方程式を伝搬刻みごとに計算する必要がなく、一度のフーリエ変換で任意の位置におけるパルス中心のレーザ強度分布を求めることができる。また、パルス中心のピークレーザ強度とピークフルエンスの関係は(2.297)式で求められるため、フルエンス分布に変換することもできる。集光距離が十分に短いため、分散の影響は無視した。

6-3　様々な開口数条件におけるレーザ集光特性

6-3-1　焦点距離 30 mm 球面平凸レンズを用いたレーザ集光特性

パルスエネルギー5.4 mJ、パルス幅 100 fs のレーザを使用し、焦点距離 30 mm の球面平凸レンズによる収差のない線形集光フルエンス分布を Fig. 6.1(a)に、球面収差を考慮した線形集光フルエンス分布を Fig. 6.1(b)に示す。球面収差のない線形集光時には、一般的なガウシアンレーザ集光時のフルエンス分布となり、最大フルエンスは 1000 J/cm^2 を超える。しかし、球面収差が生じる条件での集光時フルエンス分布は特異であり、上流側で中心部とリング状に強まったフルエンス分布が形成される。また、最大フルエンスが得られるよりも上流側で、1 J/cm^2 以上のフルエンス照射領域が広がり始める。これらはアブレーションに寄与できる大きさのフルエンスであるため、加工品質の低下に直結する。また、上流側で理想的な条件よりも高いフルエンスがレーザ中心で形成されており、中心部でプラズマ生成などの大気の非線形光学現象の影響を生じやすいことが予想される。



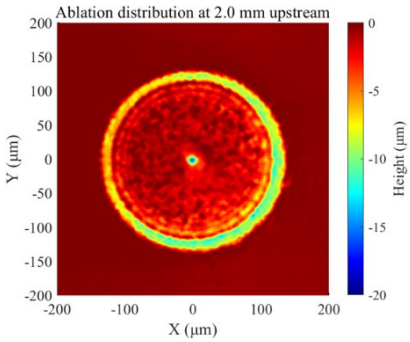
(a) Ideal focusing. (b) Considering spherical aberration.

Fig. 6.1 Calculated fluence distribution under focusing conditions with a spherical plano-convex lens with a focal length of 30 mm with spherical aberration in the linear propagation regime.

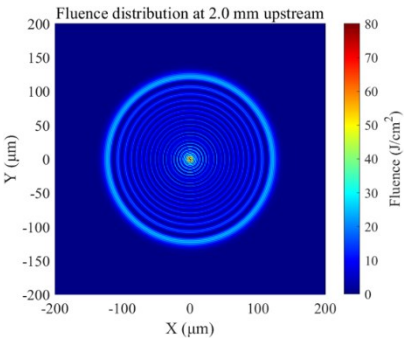
焦点距離 30 mm の集光条件で、照射位置を変更しながら試験片にレーザを照射し、アブレーション分布を測定した。代表的な位置の上流 2.0 mm、1.5 mm、1.0 mm 位置における 8 回の照射時のアブレーションの二次元分布、球面収差を考慮したフルエンス分布、1 回の照射あたりに換算したアブレーション分布とフルエンス分布を一次元化した比較図を Fig. 6.2 に示す。

上流 2.0 mm 位置では、中心部で約 15 μm の深いアブレーションとリング状に約 10 μm のアブレーション分布が得られた。これらは球面収差のフルエンス分布を反映する。線形集光領域における焦点位置は、上流 2.0 mm 位置での球面収差を考慮したフルエンス分布とリング状のアブレーション径が等しくなる位置から算出した。ただし、中心部の 600 J/cm^2 は大気の非線形光学現象により存在していないと考えられる。

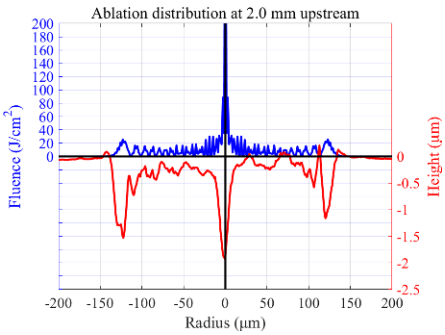
上流 1.0 mm 位置では、リング状のアブレーションの外側に弱いレーザ照射領域が広がっており、Fig. 6.1(b)に示す上流 1.5 mm 位置からの球面収差による照射領域の拡大を反映する。最も集光した位置でも中心部とリング状のアブレーション分布が観察され、ガウシアン分布やフラットトップ分布のように滑らかなアブレーション分布は得られない。



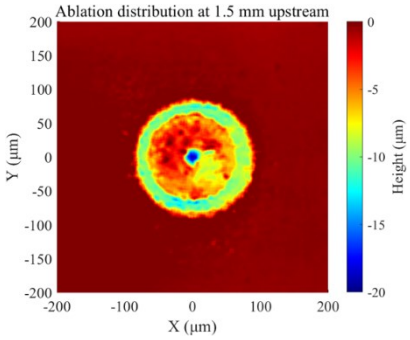
(a) 2D ablation distribution.



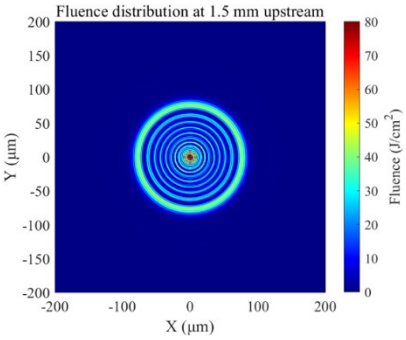
(b) 2D fluence distribution.



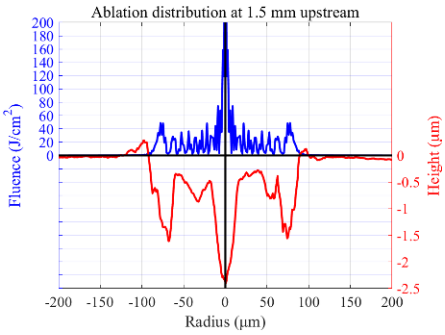
(c) 1D ablation-per-shot and fluence distribution.



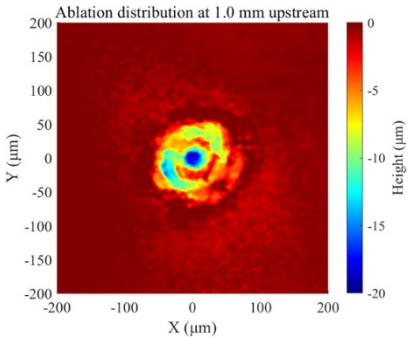
(d) 2D ablation distribution.



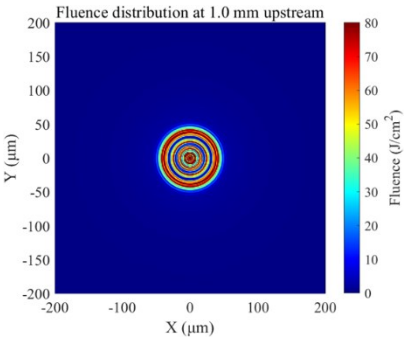
(e) 2D fluence distribution.



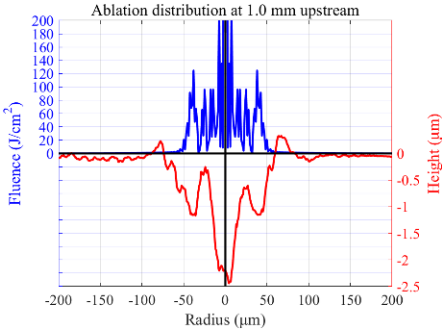
(f) 1D ablation-per-shot and fluence distribution.



(g) 2D ablation distribution.



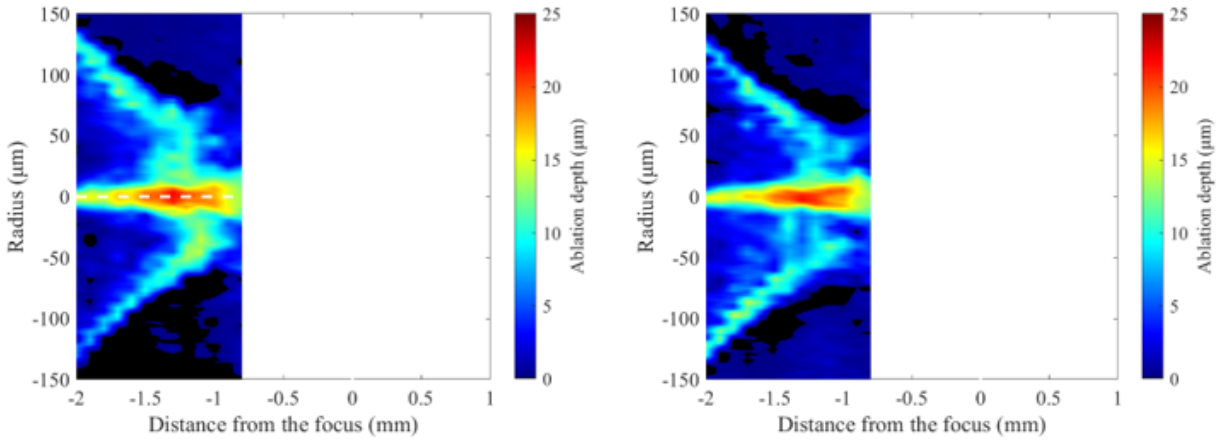
(h) 2D fluence distribution.



(i) 1D ablation-per-shot and fluence distribution.

Fig. 6.2 Ablation distribution and calculated fluence distribution in the linear propagation regime for each irradiation position. (a)-(c) At 2.0 mm upstream of the focal point. (d)-(f) At 1.5 mm upstream of the focal point. (g)-(i) At 1.0 mm upstream of the focal point.

また、伝搬方向のアブレーション領域推移を Fig. 6.3 に示す。上流 1.0 mm よりも後方では深いアブレーションが得られず、大気の非線形光学現象によるレーザ発散が確認された。焦点距離 30 mm を用いた強い集光条件においても、焦点位置よりも上流でレーザが顕著に発散することが示された。この集光条件では球面収差の影響と大気の非線形光学現象の影響を受けるため、照射位置制御を行っても適切なアブレーションを得ることはできず、有効なレーザアブレーションやレーザ衝撃加工を行うことは難しいと考えられる。



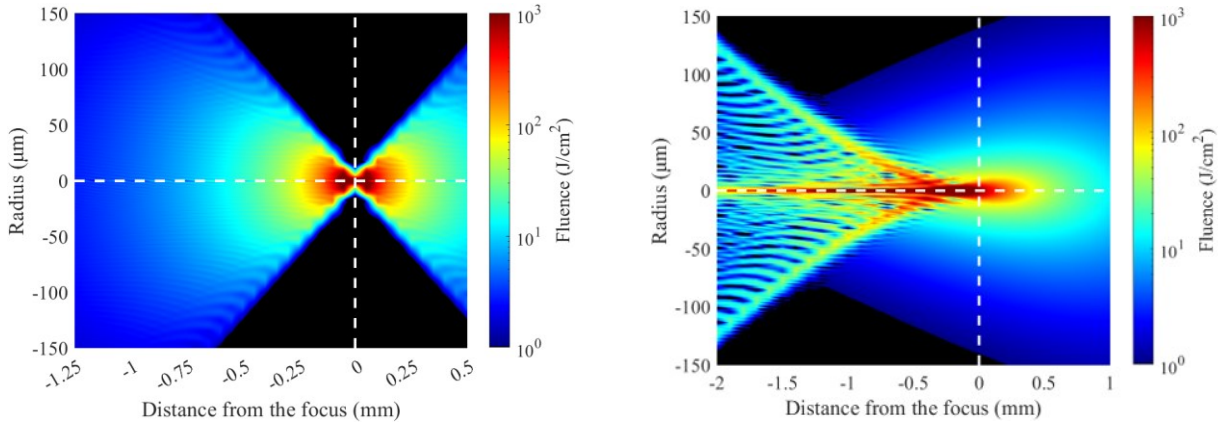
(a) x direction. (b) y direction.

Fig. 6.3 The transition of ablation area under focusing conditions with a spherical plano-convex lens with a focal length of 30 mm with spherical aberration.

6-3-2　焦点距離 20 mm 球面収差補正対物レンズを用いたレーザ集光特性

焦点距離 20 mm の球面収差補正された対物レンズを用いて、パルスエネルギー3.37 mJ、パルス幅 100 fs のレーザの理想的な線形集光フルエンス分布を Fig. 6.4(a)に、球面収差を考慮した線形集光フルエンス分布を Fig. 6.4(b)に示す。実験では、対物レンズへのアブレーションデブリの付着を防止するために、対物レンズと試験片の間にスライドガラスを設置した。対物レンズへの入射パルスエネルギーは 5.4 mJ であったが、対物レンズの瞳半径 5.2 mm であり、ビーム径よりも小さいため、レーザが切り取られ、パルスエネルギー5.4 mJ は 4.87 mJ に減少する。対物レンズ通過後のパルスエネルギーは 3.74 mJ であり、対物レンズの透過率は 77%である。さらに、スライドガラス通過後のパルスエネルギーは 3.38 mJ であり、スライドガラスの透過率は 90%である。これらの瞳径のアパーチャーと透過率を数値計算の初期条件として与え、レーザの線形集光時のフルエンス分布を計算した。

球面収差のない条件においても、瞳径による回折の影響が生じるため、シャープな照射領域推移とアブレーション領域推移が予測される。一方、球面収差の生じる条件では、焦点距離 30 mm の集光と同様に、上流側で中心部とリング状に強まったフルエンス分布となり、焦点よりも上流側で 1 J/cm^2 以上の強いフルエンス領域を持つレーザ発散が生じる。用いた対物レンズ（M Plan APO NIR 10X、ミツトヨ製）は球面収差を抑制できるため、球面平凸レンズと異なり、理想的な集光が可能であると考えられる。



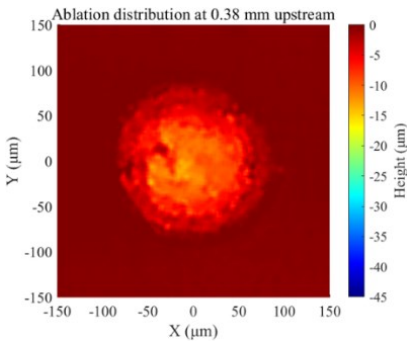
(a) Ideal focusing. (b) Considering spherical aberration.

Fig. 6.4 Calculated fluence distribution under focusing conditions with a 20 mm focal length objective lens with no spherical aberration in the linear propagation regime.

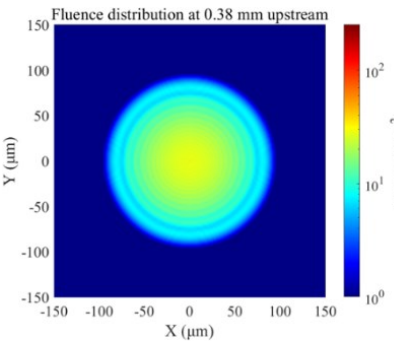
球面収差のない集光条件で、照射位置を変更しながら試験片にレーザを照射し、アブレーション分布を取得した。代表的な位置の上流 0.38 mm、0.26 mm、0.14 mm 位置における 8 回照射時のアブレーションの二次元分布、球面収差を考慮したフルエンス分布、および 1 回照射あたりに換算したアブレーション分布とフルエンス分布を一次元化した比較図を Fig. 6.5 に示す。

焦点位置よりも上流側でもガウシアンライクなアブレーション分布が観察され、中心部の深いアブレーションやリング状のアブレーションが生じていないことから、球面収差の影響は生じていない。また、瞳径の回折により、照射領域はシャープである。線形伝搬領域における焦点位置は、焦点位置から上流 0.26 mm におけるフルエンス分布とアブレーション分布が一致することから求めた。焦点位置付近での 8 回照射あたりのアブレーション深さは非常に大きく、最大で 45 μm となる。焦点距離 250 mm の実験では 8 回照射あたりのアブレーション深さは 5 μm 程度、球面収差の生じる焦点距離 30 mm の実験では中心部で 20 μm 程度であった。この結果から、本研究においては球面収差のない焦点距離 20 mm レンズを使用した集光が大気中で最も高いフルエンスを照射可能な集光条件であることが示された。

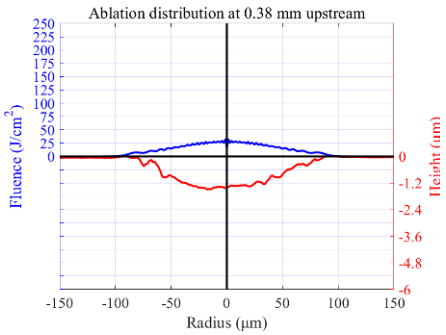
上流 0.38 mm 位置における最大フルエンスは 30 J/cm^2 であり、アブレーション深さや形状はフルエンス分布を反映する。上流 0.26 mm 位置ではアブレーション径は計算値と同等であるが、アブレーション深さは中心部でフラットであり、大気の非線形光学現象による中心部のレーザ発散が示唆される。さらに、上流 0.14 mm のフルエンス分布に対して、実際のアブレーション分布は半径方向に広いことから、レーザ発散が進行していることを示す。アブレーション深さは 40 μm であり、照射フルエンスは 100 J/cm^2 以上と推定された。推定されるピークレーザ強度は 10^{15} W/cm^2 程度と考えられる。上流 0.02 mm では理想的にはアブレーション直径は約 20 μm であるが、実験結果では約 50 μm となり、これはレーザ発散の影響が顕著である。



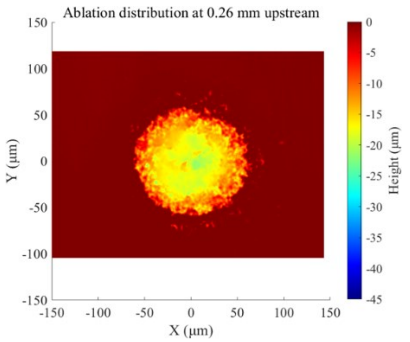
(a) 2D ablation distribution.



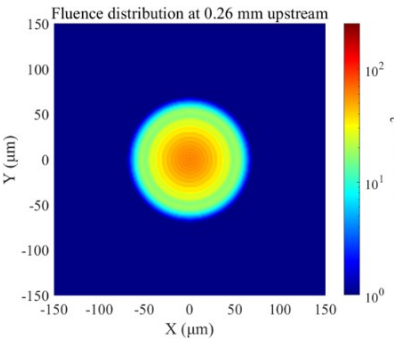
(b) 2D fluence distribution.



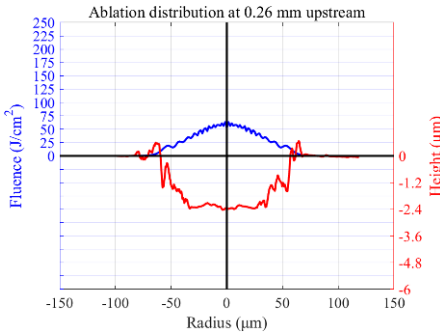
(c) 1D ablation-per-shot and fluence distribution.



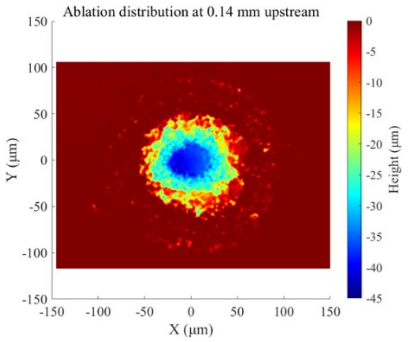
(d) 2D ablation distribution.



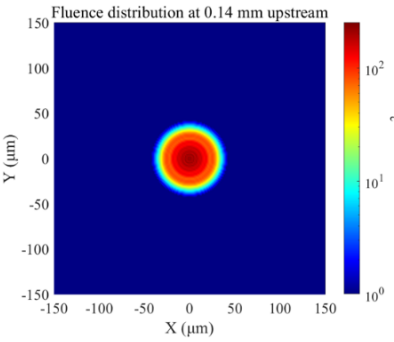
(e) 2D fluence distribution.



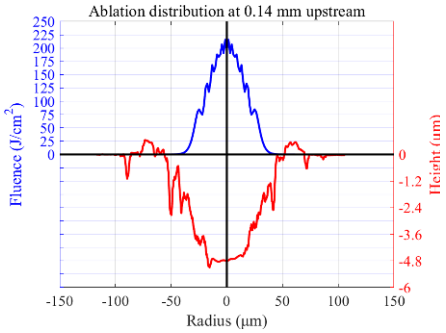
(f) 1D ablation-per-shot and fluence distribution.



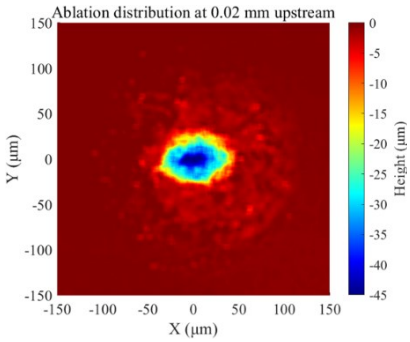
(g) 2D ablation distribution.



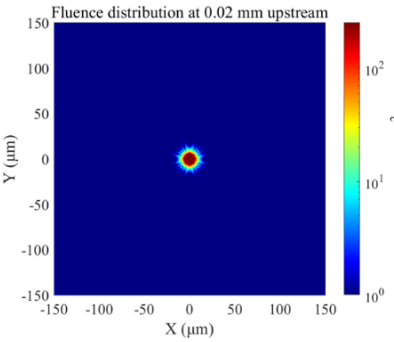
(h) 2D fluence distribution.



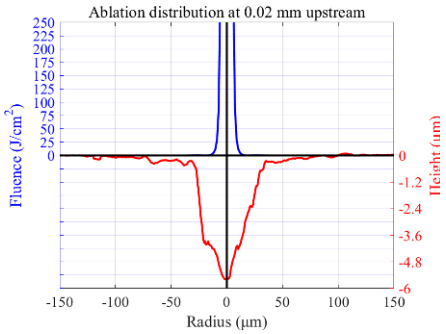
(i) 1D ablation-per-shot and fluence distribution.



(j) 2D ablation distribution.



(k) 2D fluence distribution.

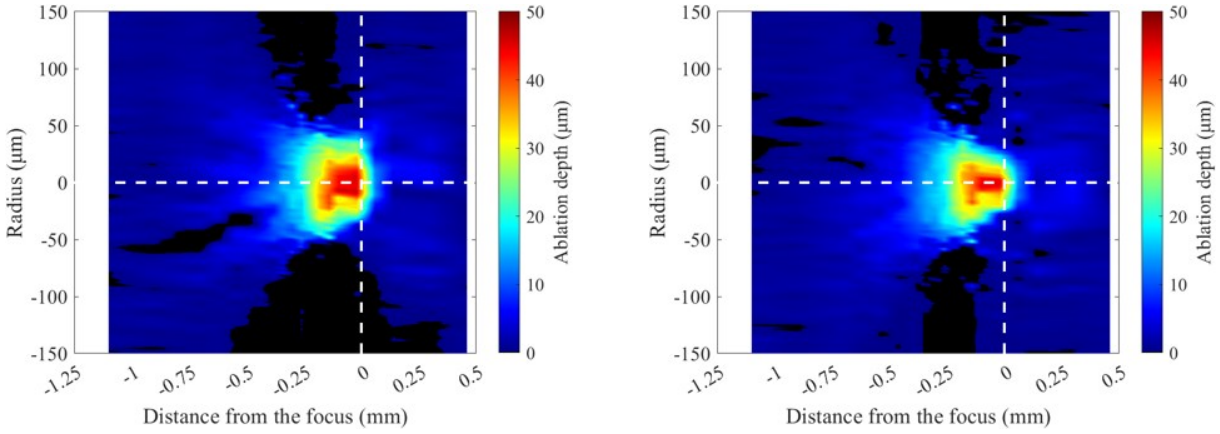


(l) 1D ablation-per-shot and fluence distribution.

Fig. 6.5 Ablation distribution and calculated fluence distribution in the linear propagation regime for each irradiation position. (a)-(c) At 0.38 mm upstream of the focal point. (d)-(f) At 0.26 mm upstream of the focal point. (g)-(i) At 0.14 mm upstream of the focal point. (j)-(l) At 0.02 mm upstream of the focal point.

また、伝搬方向のアブレーション領域推移を Fig. 6.6 において、焦点位置より上流約 0.25 mm 位置からレーザ発散が生じ始めることが観察される。球面収差のない焦点距離 20 mm を用いた集光条件では到達フルエンスを高くでき、大気の分子をすべて一度電離するレーザ強度である 2.0×10^{14} W/cm^2 よりも高いレーザ強度を実現することができる。ただし、焦点位置までの理想的な集光は達成されない。この強度飽和の原因は、大気分子の二価の電離が影響を及ぼし始めるためと考えられる。希ガスでは二価の電離に必要なエネルギーは良く知られており、レーザ強度が 10^{15} W/cm^2 程度で二価の電離は生じ始める。酸素分子および窒素分子における二価の電離に必要なエネルギーは明らかでないが、同程度のレーザ強度で飽和が開始すると予測できる。また、これらはプラズマによるレーザ発散の影響が回折に比べて相対的に小さいだけであり、レーザ発散以外の非線形光学効果は顕著に受けることに留意する。例えば、大気の電離へのエネルギー損失やプラズマ生成に伴う屈折率変化による自己位相変調は大きく、線形現象と非線形現象の境界は対象とする現象によって異なる。

この条件下では、照射位置の制御によって非常に強いアブレーションを引き起こすことができるため、アブレーションやピーニング加工に効果的である。また、上流 0.38 mm などでも良好なアブレーション分布が得られることから、フルエンスを下げて、かわりにアブレーション径を拡大したピーニングに応用できる可能性がある。

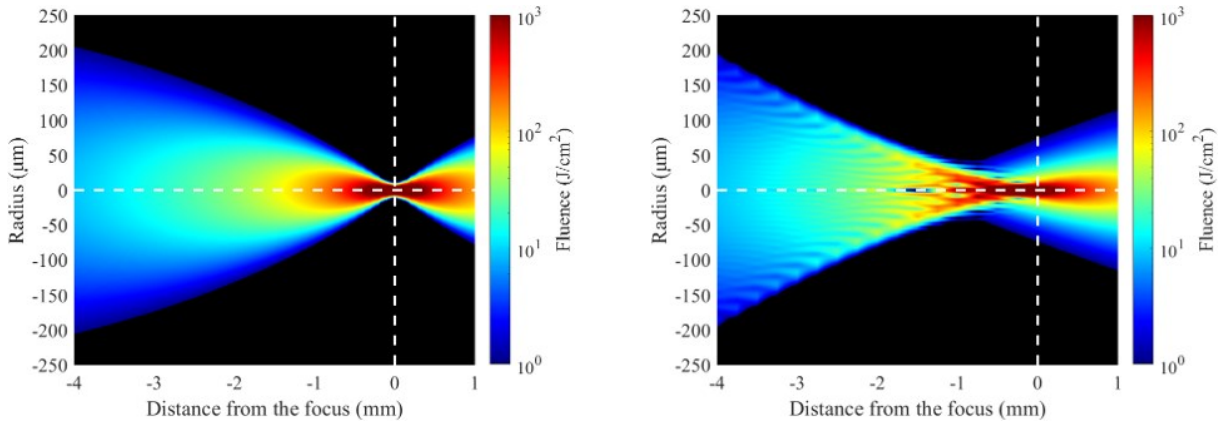


(a) x direction. (b) y direction.

Fig. 6.6 The transition of ablation area under focusing conditions with a 20 mm focal length objective lens with no spherical aberration.

6-3-3 焦点距離 100 mm 球面平凸レンズを用いたレーザ集光特性

焦点距離 100 mm の球面平凸レンズを用いて、パルスエネルギー5.5 mJ、パルス幅 100 fs のレーザの理想的な線形集光フルエンス分布を Fig. 6.7(a)に、球面収差を考慮した線形集光フルエンス分布を Fig. 6.7(b)に示す。焦点距離 20 mm や 30 mm と比較して、レンズ厚みが薄いため、球面収差の影響は小さくなる。球面収差によって照射領域推移はシャープとなるが、最も集光する位置は上流側に移動し、集光径は理想的な条件よりも大きくなる。

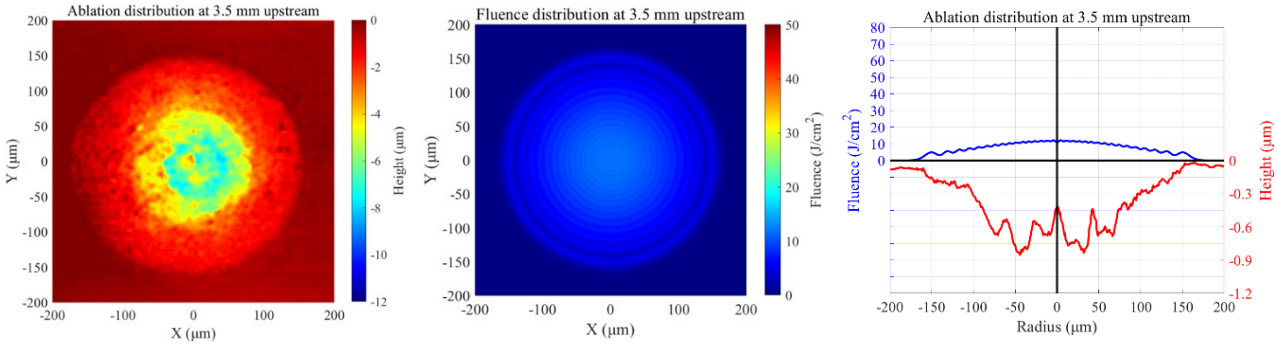


(a) Ideal focusing. (b) Considering spherical aberration.

Fig. 6.7 Calculated fluence distribution under focusing conditions with a spherical plano-convex lens with a focal length of 100 mm with spherical aberration in the linear propagation regime.

焦点距離 100 mm の集光条件で照射位置を変更しながら試験片にレーザを照射し、アブレーション分布を取得した。代表的な位置の上流 3.5 mm、2.8 mm、2.0 mm 位置における 8 回照射時のアブレーションの二次元分布、球面収差を考慮したフルエンス分布、それらの一次元比較図を Fig. 6.8 に示す。線形集光領域における焦点位置は、球面収差を考慮したフルエンス分布とアブレーション径が等しくなる位置から算出した。

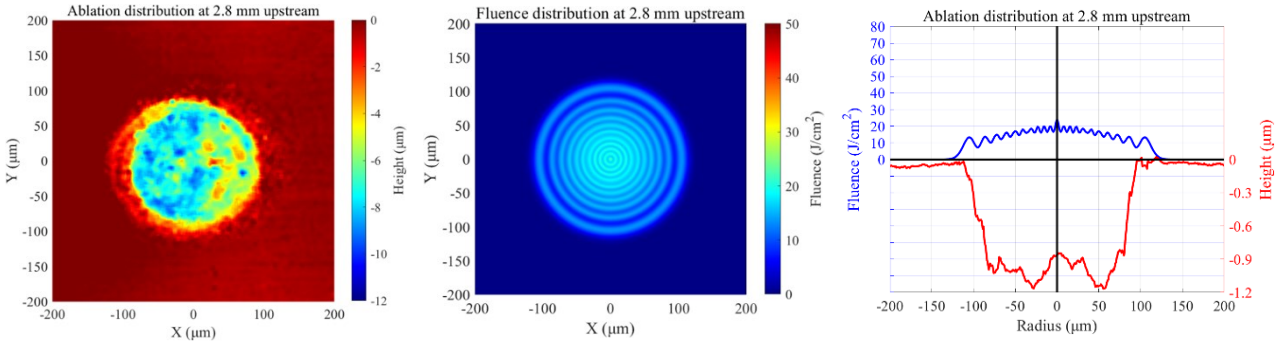
上流 3.5 mm 位置では、ガウシアンライクなアブレーション分布が観察され、アブレーション深さは 8 回あたり 6 μm である。上流 2.8 mm 位置ではレーザのさらなる集光が見られ、アブレーション深さは 8 μm となる。アブレーション分布はフラットな形状を持ち、フルエンス分布も全体が 10 J/cm^2 から 20 J/cm^2 の範囲内におさまる結果を反映する。Fig. 5.6(e)に示した焦点距離 250 mm レンズ集光時とは異なり、アブレーションに寄与しない弱いレーザ照射領域はなく、アブレーションへのエネルギー効率に優れた条件である。これは球面収差によりフルエンス分布の外周部がシャープに高まるためである。上流 2.0 mm 位置ではアブレーション径は小さくなるが、アブレーションの外側に弱いレーザ照射領域が広がっており、アブレーション深さは 8 μm のまま変化していない。このことから、大気の非線形光学現象によるレーザ発散が生じることが示される。



(a) 2D ablation distribution.

(b) 2D fluence distribution.

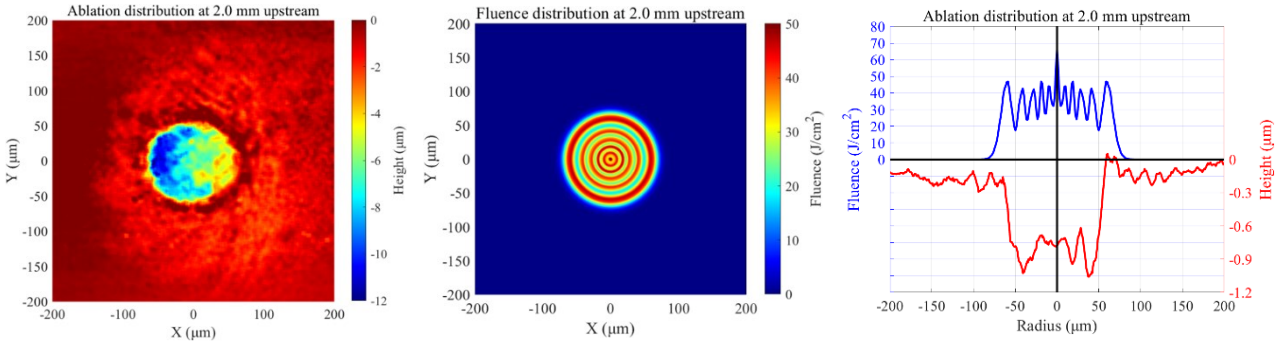
(c) 1D ablation-per-shot and fluence distribution.



(d) 2D ablation distribution.

(e) 2D fluence distribution.

(f) 1D ablation-per-shot and fluence distribution.



(g) 2D ablation distribution.

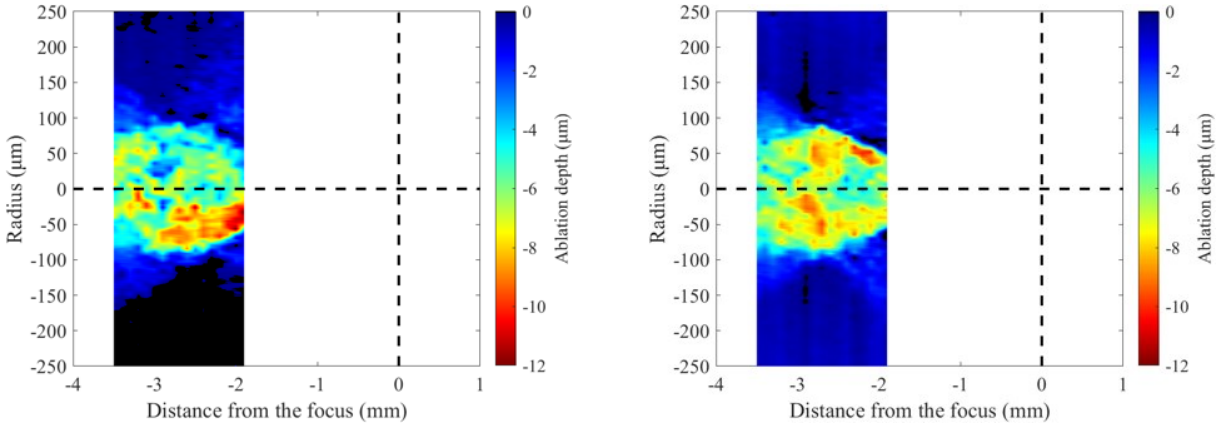
(h) 2D fluence distribution.

(i) 1D ablation-per-shot and fluence distribution.

Fig. 6.8 Ablation distribution and calculated fluence distribution in the linear propagation regime for each irradiation position. (a)-(c) At 3.5 mm upstream of the focal point. (d)-(f) At 2.8 mm upstream of the focal point. (g)-(i) At 2.0 mm upstream of the focal point.

また、伝搬方向のアブレーション領域推移を Fig. 6.9 に示す。上流 2.8 mm からレーザアブレーション深さは増加せず、レーザ発散が生じることが観察される。アブレーション深さの最大値から、本集光条件での到達可能な最大フルエンスは約 20 J/cm^2 と推定される。上流 2.8 mm 位置でのレーザ加工では、約 20 J/cm^2 のフラットなフルエンス分布のレーザを照射することが可能であり、ピーニング加工の効率が良いと考えられる。空間光位相変調機（SLM: Spatial Light Modulator）や回折光

学素子（DOE: Diffraction of Element）を用いたフラットトップのフルエンス分布形成は、高レーザ強度の場合、大気の非線形光学現象を受け困難であるため、高フルエンスレーザ加工においてこれらは疑似的なフラットトップのフルエンス照射に活用できる可能性がある。



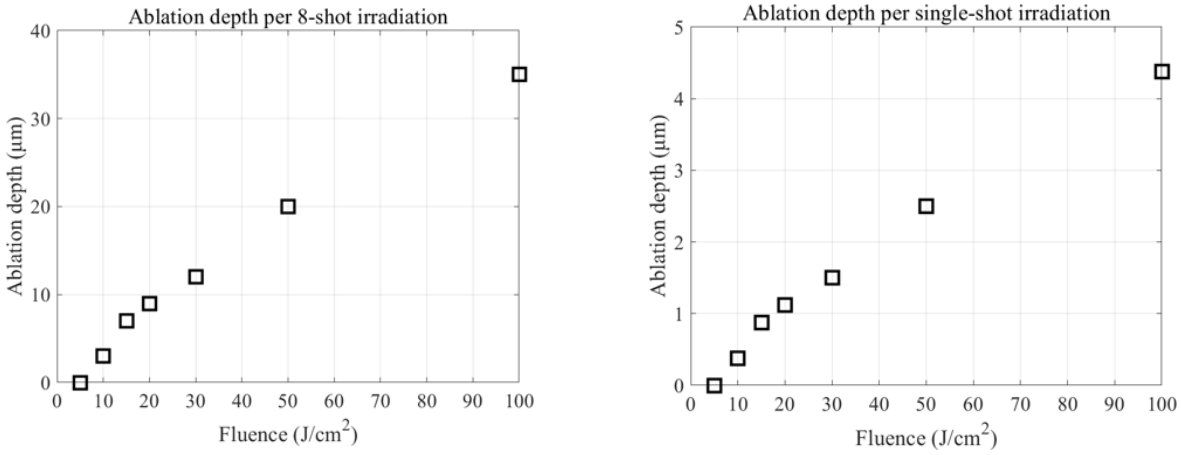
(a) x direction.　　(b) y direction.

Fig. 6.9 The transition of ablation area under focusing conditions with a spherical plano-convex lens with a focal length of 100 mm with spherical aberration in the linear propagation regime.

6-3-4　アブレーション深さのフルエンス依存性

これまでの実験結果は、フルエンス分布とアブレーション分布が良く対応することを表している。特に、大気の非線形光学現象によるレーザ発散の影響の小さい条件である対物レンズ焦点距離 20 mm による上流 0.38 mm、0.26 mm の加工結果を用いて、50 J/cm^2 までのフルエンスに対するアブレーション深さを推定できる。大気の非線形光学現象がやや影響する上流 0.14 mm の加工結果からは、フルエンス 100 J/cm^2 に対するアブレーション深さの参考値を求められる。

これらの結果は、Fig. 1.17 に示した先行研究における真空条件でのアブレーション深さを再現しており、高い開口数条件では大気中でも大きなアブレーション深さを得られることを示している。施工雰囲気が大気中か真空中かによらず、真に金属に照射されるレーザ強度やフルエンスを理解することが重要である。



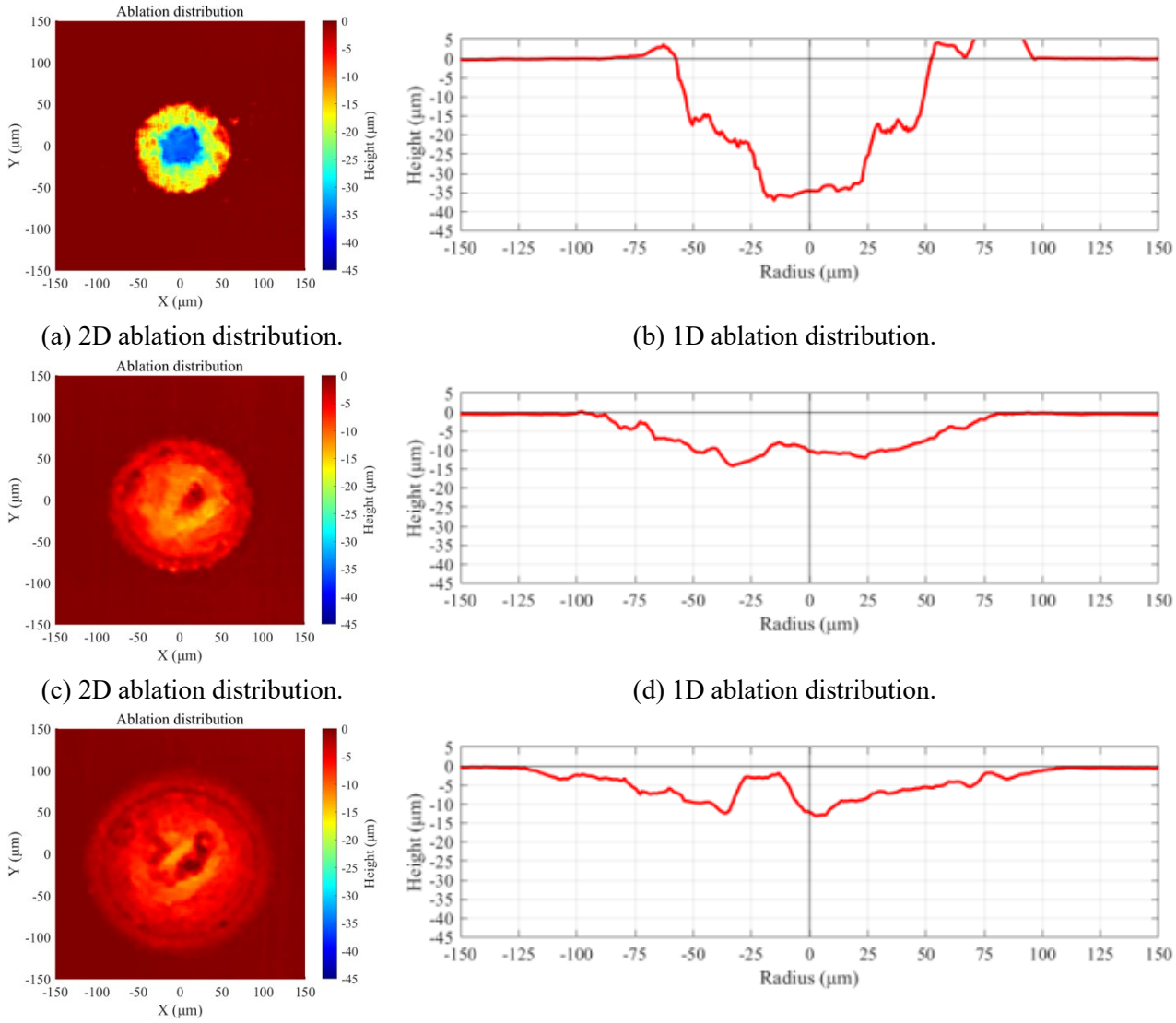
(a) 8th ablation depth.　　(b) Single ablation depth.

Fig. 6.10 Fluence dependence of ablation depth

6-4　数 10~100 J/cm^2 のフルエンス領域におけるドライレーザピーニング特性

6-4-1　焦点距離 20 mm 球面収差補正対物レンズを用いた数 mJ 級レーザ加工

フルエンスの上昇とアブレーション径の拡大はピーニング効果付与深さを向上する。まず、パルスエネルギーを 3.8 mJ に固定し、焦点距離 100 mm や焦点距離 250 mm では得られない高フルエンス条件でのピーニングを施工した。また、照射位置を上流側に制御し、アブレーション直径を変化させた実験を行う。アブレーション直径は 110 μm、180 μm、230 μm の三条件とした。それぞれのアブレーション分布を Fig. 6.11(a)-(f)に示す。8 回の照射あたりの最大アブレーション深さはそれぞれ 35 μm、14 μm、13 μm である。ピーニング時の照射間隔は全条件で 40 μm に統一し、単位面積あたりに投入されるエネルギー量を統一した。



(a) 2D ablation distribution.　(b) 1D ablation distribution.

(c) 2D ablation distribution.　(d) 1D ablation distribution.

(e) 2D ablation distribution.　(f) 1D ablation distribution.

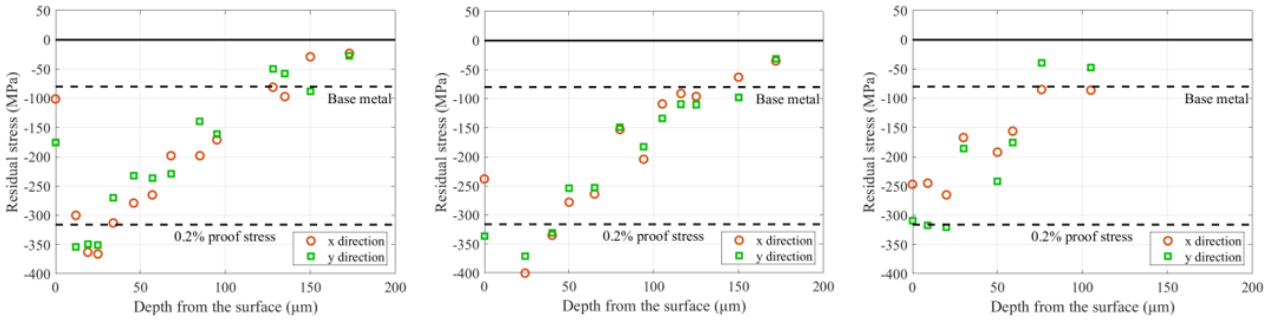
Fig. 6.11 Ablation distribution for each ablation diameter. (a),(b) 110 μm. (c),(d) 180 μm. (e),(f) 230 μm.

Fig. 6.12 には各ピーニング後の深さ方向の圧縮残留応力分布を示す。最も集光されたアブレーション直径 110 μm 条件では、最表層の圧縮残留応力が 100 MPa から 200 MPa とやや小さい値であるが、これらは計測にデブリを多く含むためと考えられる。研磨後の母材の表層の応力を基準とした

圧縮残留応力付与深さは約 130 μm である。アブレーション直径 180 μm 条件では、表層の圧縮残留応力も良好であり、圧縮残留応力付与深さは約 150 μm である。また、アブレーション直径 230 μm 条件では圧縮残留応力付与深さが約 75 μm であり、ほかの条件に比べて浅い。したがって、集光を強めることでピーニング効果は向上するが、過剰な集光では圧縮残留応力付与深さは向上しない。

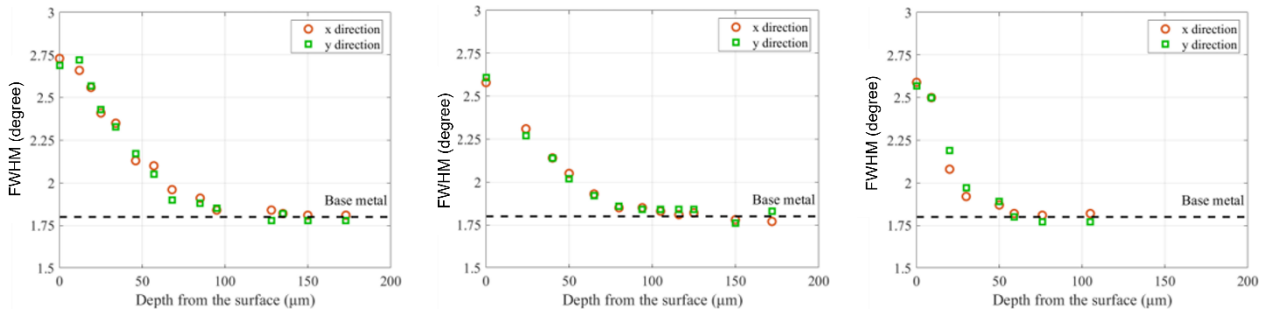
Fig. 6.13 に圧縮残留応力計測時の深さ方向の半値全幅の推移を示す。第 5 章で示したように、X 線回折法による残留応力計測時の半値全幅の大きさは結晶粒径に依存するサイズ効果と歪み効果の指標となる。母材の半値全幅は約 1.80 MPa であった。半値全幅の上昇領域の基準を 1.84 MPa とする。最も集光されたアブレーション直径 110 μm 条件では、最表層の半値全幅が 2.75 MPa であり、半値全幅の上昇領域は約 100 μm である。アブレーション直径 180 μm 条件では、最表層の半値全幅が 2.61 MPa であり、半値全幅の上昇領域は約 100 μm である。アブレーション直径 230 μm 条件では、最表層の半値全幅が 2.57 MPa であり、半値全幅の上昇領域は約 60 μm であった。低フルエンス条件では表層の塑性変形量が小さく、塑性変形領域が浅い傾向が見られる。アブレーション径 110 μm の条件では表層 20 μm 程度まで半値全幅が非常に高く、塑性変形量が非常に大きいことが示唆されるが、半値全幅の上昇領域はアブレーション径 180 μm と同程度である。

ピーニング効果の一つである疲労寿命伸展に対して、表層の加工硬化は有効に働くため、高フルエンスの照射はピーニングに対して有効であると考えられる。ただし、フルエンスが高くても深さ方向への塑性変形量に制約が生じることから、衝撃波の深さ方向への伝搬はフルエンスだけでは決まらないことが示唆される。その原因の一つにアブレーション径が考えられるため、次の節では、フルエンスを同程度に保ち、アブレーション径を変化させた場合のピーニング効果を調査する。



(a) Diameter 110 μm. (b) Diameter 180 μm. (c) Diameter 230 μm.

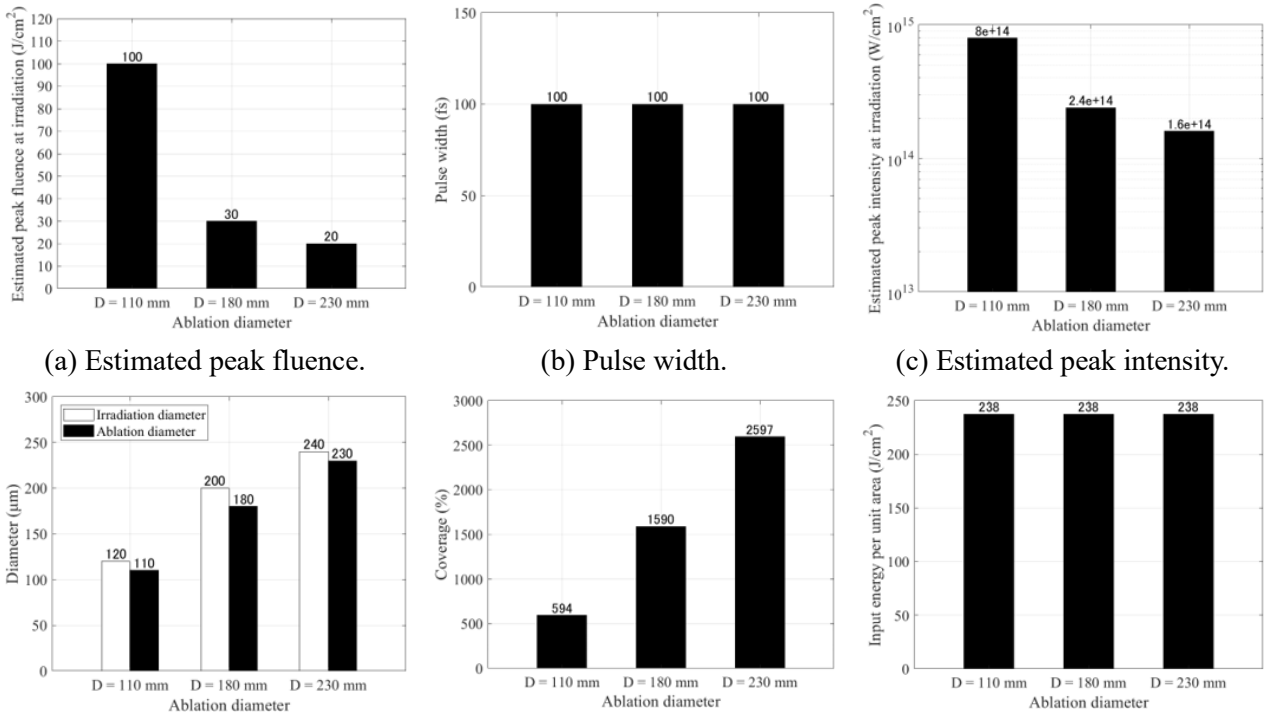
Fig. 6.12 Depth profile of compressive residual stress after peening for each irradiation position.



(a) Diameter 110 μm. (b) Diameter 180 μm. (c) Diameter 230 μm.

Fig. 6.13 Depth profile of FWHM after peening for each irradiation position.

ピーニング時の各パラメータを Fig. 6.14 に示す。全条件でパルス幅は 100 fs である。照射間隔は 40 μm に統一しており、単位面積あたりの投入エネルギーは等しい。最も集光されたアブレーション直径 110 μm の条件では、推定ピークフルエンスが 100 J/cm^2 を超え、十分な塑性変形量をもたらした。アブレーション直径 230 μm 条件では推定ピークフルエンスが 20 J/cm^2 であり、深い領域への塑性変形には十分でないと考えられる。第 5 章のピーニングはフルエンスが 15 J/cm^2 であり、同程度の半値全幅の増加領域となっていることからも、塑性変形量はフルエンスに大きく依存すると考えられる。



(a) Estimated peak fluence. (b) Pulse width. (c) Estimated peak intensity.

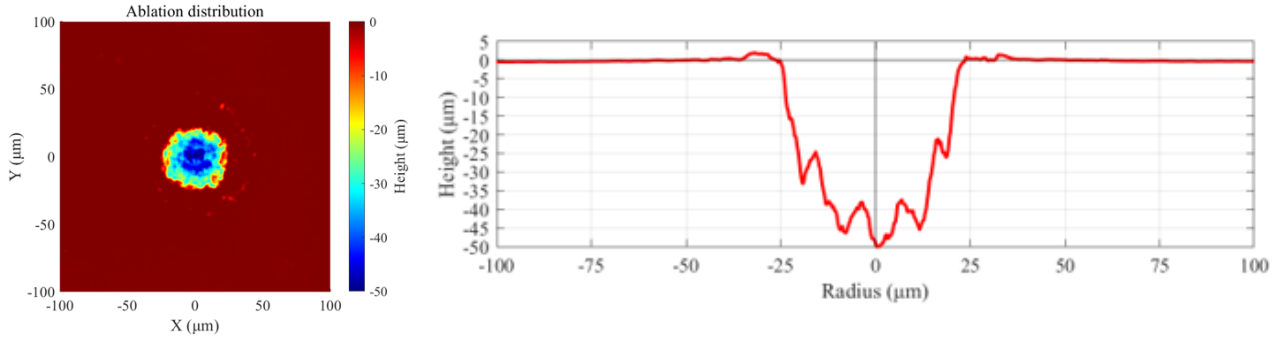
(d) Irradiation diameter and ablation diameter. (e) Coverage. (f) Input energy per unit area.

Fig. 6.14 Fluence dependence of process parameters affecting the peening process.

6-4-2　焦点距離 20 mm 球面収差補正対物レンズを用いたサブ mJ 級レーザ加工

6-4-1 の実験では、フルエンスの過剰な増加が表層の半値全幅を増加するが、圧縮残留応力の付与深さや半値全幅の増加領域には寄与しないことが示された。衝撃波の深さ方向への伝搬において、フルエンスの他にアブレーション径の影響があると考えられるため、同一のフルエンスでアブレーション径の小さな条件でのピーニング加工を行う。パルスエネルギーを 0.5 mJ に設定し、先行の 3.8 mJ と同様に焦点距離 20 mm 球面収差補正対物レンズを用いた条件でピーニングを実施する。

Fig. 6.15 にピーニング時のアブレーション分布を示す。アブレーション直径が 50 μm であり、アブレーション深さは 40 μm から 50 μm である。推定ピークフルエンスは 120 J/cm^2 である。この条件は、6-4-1 のピーニング条件よりもアブレーション径が小さく、フルエンスがわずかに高いため、アブレーション径の影響を調査できる。照射間隔は 30 μm、20 μm、10 μm の三条件を用いて、最適なピーニング条件は得られているものとする。

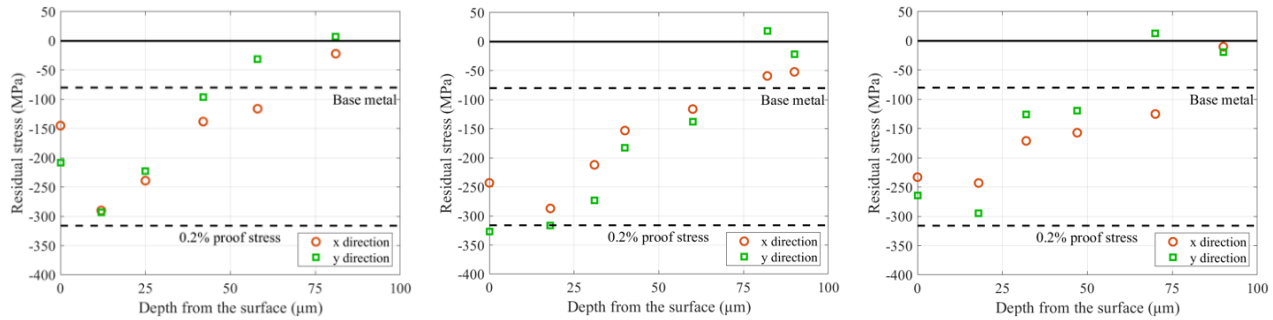


(a) 2D ablation distribution. (b) 1D ablation distribution.

Fig. 6.15 Ablation distribution for 0.5 mJ, f20 focusing condition.

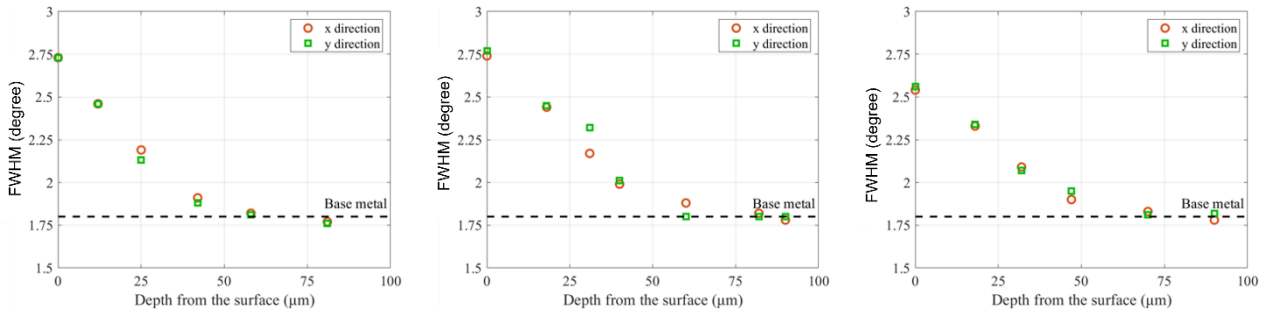
Fig. 6.16 では、各ピーニング後の深さ方向の圧縮残留応力分布を示す。照射間隔の最適値は 20 μm のようであり、照射間隔を増加しても圧縮残留応力付与深さには上限が生じ、75 μm 程度である。この値は 6-4-1 のピーニング条件と比較して半分程度である。

Fig. 6.17 に圧縮残留応力計測時の深さ方向の半値全幅の推移を示す。表層の半値全幅の値は 2.75 MPa であり、6-4-1 のピーニング条件と同等である。したがって、表層の塑性変形量はフルエンスに依存することが確認された。一方で、半値全幅の増加領域は 60 μm 程度であった。すなわち、フルエンスが同程度であっても、半値全幅の増加領域は半分以下となった。これらのことから、半値全幅の増加領域や圧縮残留応力付与深さはアブレーション径によって制約されると考察できる。



(a) Distance 30 μm. (b) Distance 20 μm. (c) Distance 10 μm.

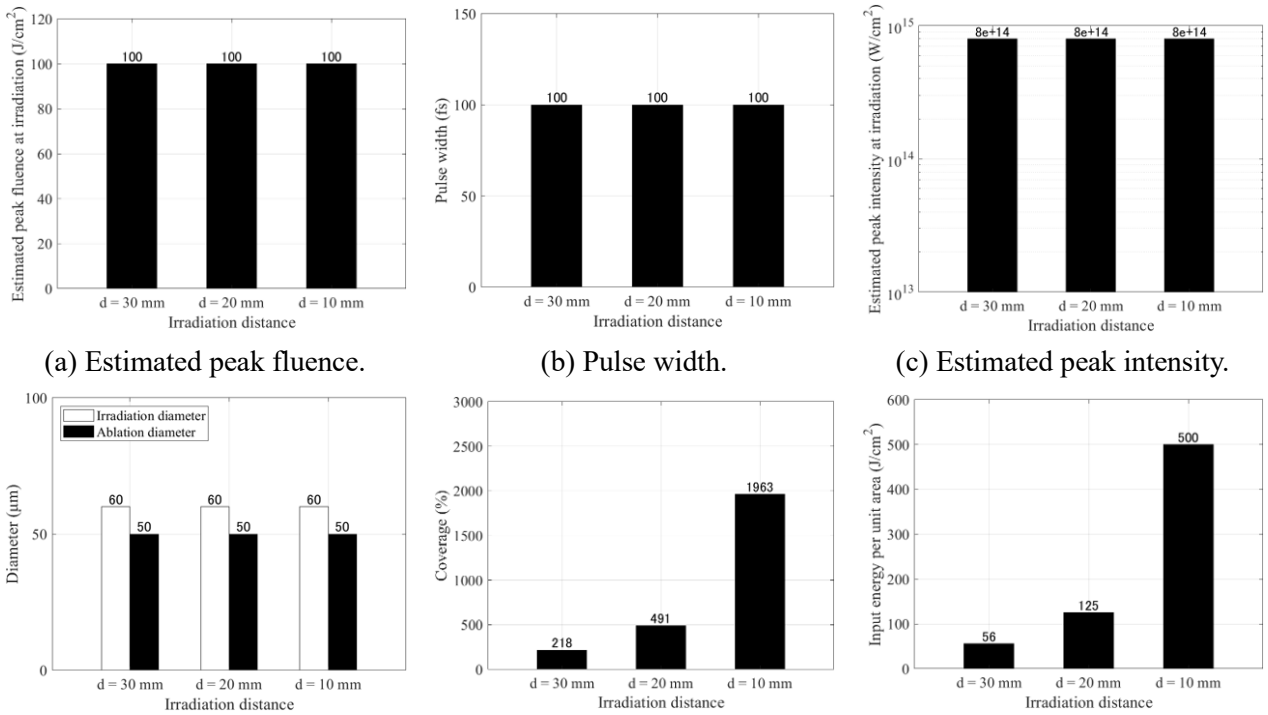
Fig. 6.16 Depth profile of compressive residual stress after peening for each irradiation distance.



(a) Distance 30 μm. (b) Distance 20 μm. (c) Distance 10 μm.

Fig. 6.17 Depth profile of FWHM after peening for each irradiation distance.

Fig. 6.18 では、ピーニングのパラメータを示す。レーザパラメータや照射位置は同一であるため、照射間隔のみが異なる。投入エネルギー量が多い条件では表層の圧縮残留応力値が弱まることが示された。これらはデブリの量の増加や熱影響の増加が原因であると考えられる。ドライレーザピーニングにおいて過剰な照射回数は不適切である。



(a) Estimated peak fluence. (b) Pulse width. (c) Estimated peak intensity.

(d) Irradiation diameter and ablation diameter. (e) Coverage. (f) Input energy per unit area.

Fig. 6.18 Irradiation distance dependence of process parameters affecting the peening process.

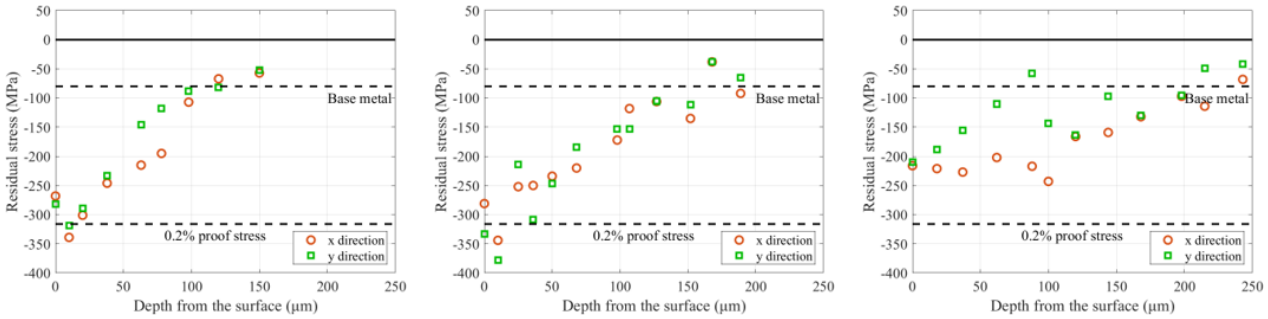
6-4-3　焦点距離 100 mm 球面平凸レンズを用いたレーザ加工

焦点距離 100 mm 球面平凸レンズでは、最も集光する位置でレーザ照射領域全体にフラットなアブレーションを形成できるため、ピーニング加工に有効である。パルスエネルギーを 5.5 mJ に固定し、照射位置を最も集光する位置で施工を行った。この条件下でのアブレーション分布は Fig. 6.10(c),(d)である。アブレーション直径はおよそ 180 μm であり、推定ピークフルエンスは 20 J/cm^2 である。一方、6-4-1 のアブレーション径 180 μm ではガウシアン形状のフルエンス分布が見られるが、本集光条件では比較的フラットトップなフルエンス分布である。照射間隔は 60 μm、40 μm、20 μm の三条件とした。

Fig. 6.19 に各ピーニング後の圧縮残留応力分布を示す。圧縮残留応力はいずれの条件でも付与された。特に、照射間隔 40 μm の条件では、最も深い圧縮残留応力付与深さが得られ、その値は 160 μm であった。これは 6-4-1 のアブレーション径 180 μm 条件と同程度の値である。ピークフルエンスは本条件の方が小さいが、アブレーション全体に高いフルエンスが照射されることで塑性変形量が増加したと考えられる。

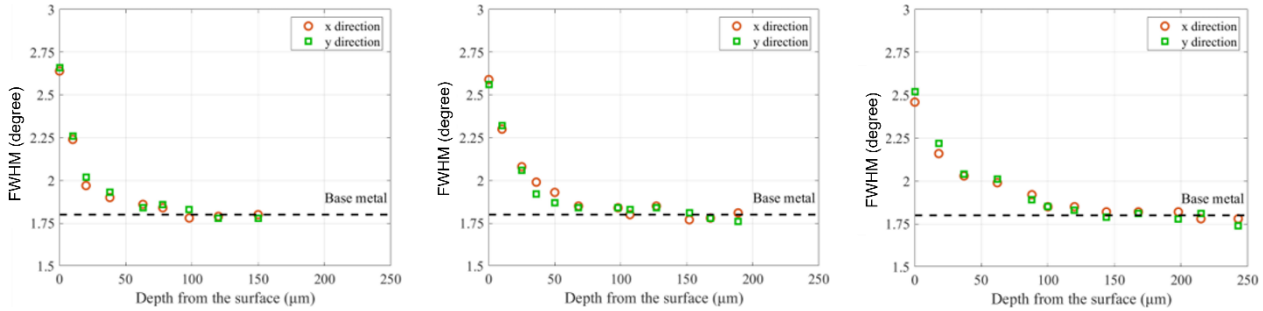
Fig. 6.20 に圧縮残留応力計測時の深さ方向の半値全幅の推移を示す。照射間隔 40 μm 条件で、表

層の半値全幅の値は 2.56 MPa であった。これは 6-4-1 のアブレーション径 230 μm 条件と同程度の値である。フルエンスが同程度であるため、半値全幅の増加も同程度と考えられる。照射間隔の小さな条件では、半値全幅の増加領域が深くなり、塑性変形量が蓄積されたことを示す。ただし、照射間隔の小さな条件では、圧縮残留応力分布は緩和されることが示された。したがって、ピークフルエンスが同程度のフルエンスの場合、フラットトップ分布のフルエンスはガウシアン分布と比較して圧縮残留応力付与深さを拡大する。以上より、焦点距離の長いレンズを用いても、適切な照射位置でのピーニング加工により、対物レンズ集光時と同等のピーニング効果を得られることが示された。



(a) Distance 60 μm. (b) Distance 40 μm. (c) Distance 20 μm.

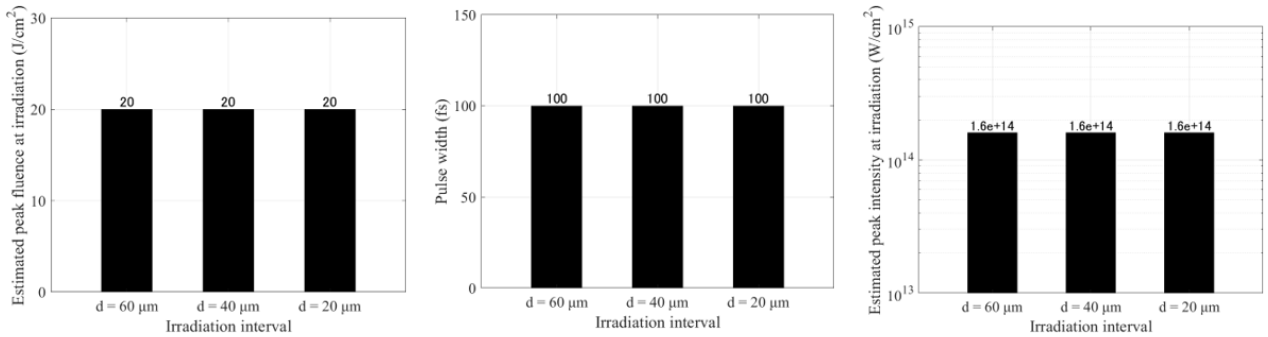
Fig. 6.19 Depth profile of compressive residual stress after peening for each irradiation distance.



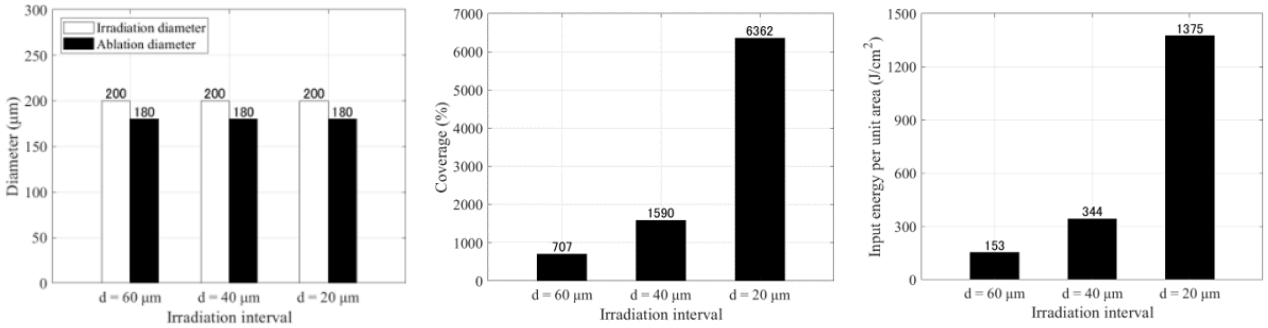
(a) Distance 60 μm. (b) Distance 40 μm. (c) Distance 20 μm.

Fig. 6.20 Depth profile of FWHM after peening for each irradiation distance.

Fig. 6.21 にピーニングのパラメータを示す。レーザパラメータや照射位置は同一であるため、照射間隔のみが異なる。合計入力エネルギー量が多い条件では表層の圧縮残留応力値が弱まることが示された。フルエンスやアブレーション径がピーニング効果付与深さの限界値に重要であり、照射間隔はその最適化に必要なパラメータである。



(a) Estimated peak fluence. (b) Pulse width. (c) Estimated peak intensity.



(d) Irradiation diameter and ablation diameter. (e) Coverage. (f) Input energy per unit area.

Fig. 6.21 Irradiation distance dependence of process parameters affecting the peening process.

6-5 考察

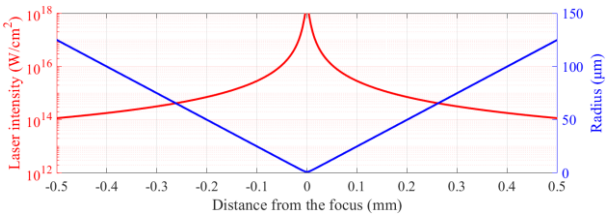
6-5-1 高開口数条件における大気の非線形光学現象の影響

本節では、高開口数条件において、到達可能なレーザ強度が大気の電離閾値を上回る理由について考察する。5-5-4 節と同様に、位相変化量パラメータをガウシアンレーザの線形集光時の強度分布上で比較することで、レーザ発散を開始する位置の予測が可能である。パルスエネルギー3.0 mJ 条件の線形集光時の強度分布を Fig. 6.22(a)に、レーザ強度に対応するプラズマ密度を算出し、位相変化量パラメータに変換した結果を Fig. 6.22(b)に示す。上流 3.0 mm 位置でプラズマ密度は飽和することが示される。レーザ集光過程で回折による位相変化量パラメータとプラズマ散乱による位相変化量パラメータの交点は生じないため、顕著なレーザ発散現象が生じる位置は明確でない。そのため、回折による変化に対して、大気の非線形光学現象の影響は小さくなると考えられる。

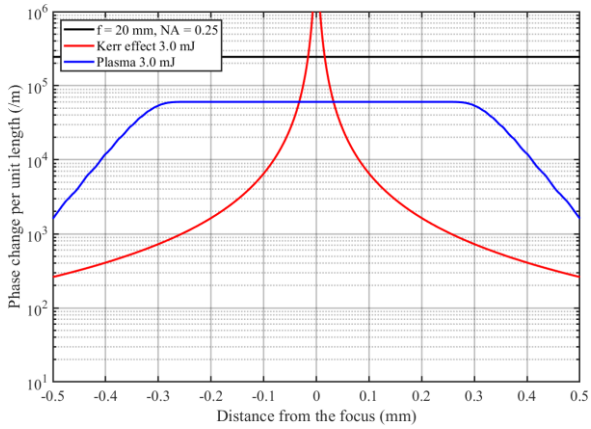
5-5-5 節と同様に、上流側で残存する位相差を、線形集光を仮定した回折と光カー効果とプラズマ散乱によって減少させる過程を考える。ビーム半径位置とビーム半径の 2 倍の位置の位相差を積算した結果をそれぞれ、Fig. 6.23(a)、Fig. 6.23(b)に示す。回折のみを考慮した残存位相差は直線となり、焦点位置でゼロとなる。回折と光カー効果を考慮した残存位相差は、上流側でほとんど変化せず、光カー効果の寄与が小さいことを表す。焦点位置付近で光カー効果の影響が大きくなるが、実際には上流側でレーザは発散するため、意味を持たないグラフである。回折とプラズマ散乱を考慮した残存位相差は、上流側 3.0 mm 位置からやや変化が生じ、回折よりも上流側で残存位相差をゼロとする。このように、回折が十分に大きな位相変化量を持つ条件であっても、プラズマ散乱による位相変化量は常に波面の位相差の減少に寄与することが強調される。

第 4 章や第 5 章のレーザ集光条件では、プラズマ密度を飽和するレーザ強度まで集光できない制

約が生じる。しかし、本条件では、プラズマ密度が飽和しても、集光が持続し、レーザ強度が増加する現象が観察されている。焦点距離 250 mm の集光条件である Fig. 5.20(d)では、プラズマ散乱による影響を受け始める際の残存位相差が 10 であるのに対し、本条件である Fig. 6.23(a)では 75 となっている。開口数が高く、初期に与えられる波面の位相変化量が大きいことにより、大気の電離閾値を超えるレーザ強度に到達した際に、電場の波面の残存位相差の値が大きい。そのため、プラズマ散乱による位相変化を受けても電場の波面に十分な位相差が残されているため、集光を持続でき、大気の電離閾値を上回るレーザ強度に到達可能となったと考えられる。

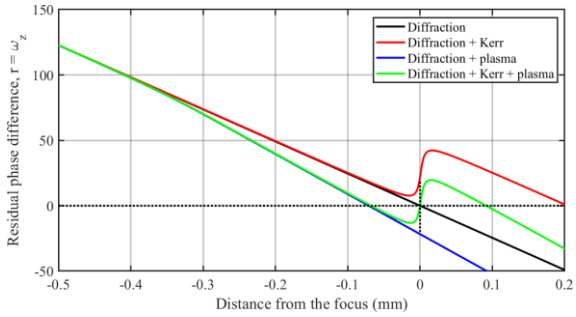


(a) Intensity distribution.

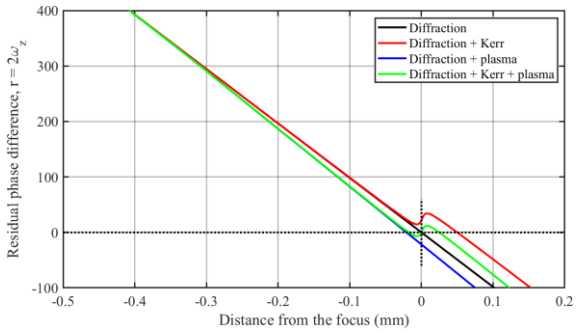


(b) Relation between phase change parameters.

Fig. 6.22 (a) Intensity distribution at linear Gaussian focusing for pulse energy of 3.0 mJ. (b) Relation between phase change parameter of diffraction, phase change parameter of Kerr effect, and phase change parameter of plasma calculated from the intensity distribution at linear Gaussian focusing for pulse energy of 3.0 mJ.



(a) Residual phase difference at the beam radius.

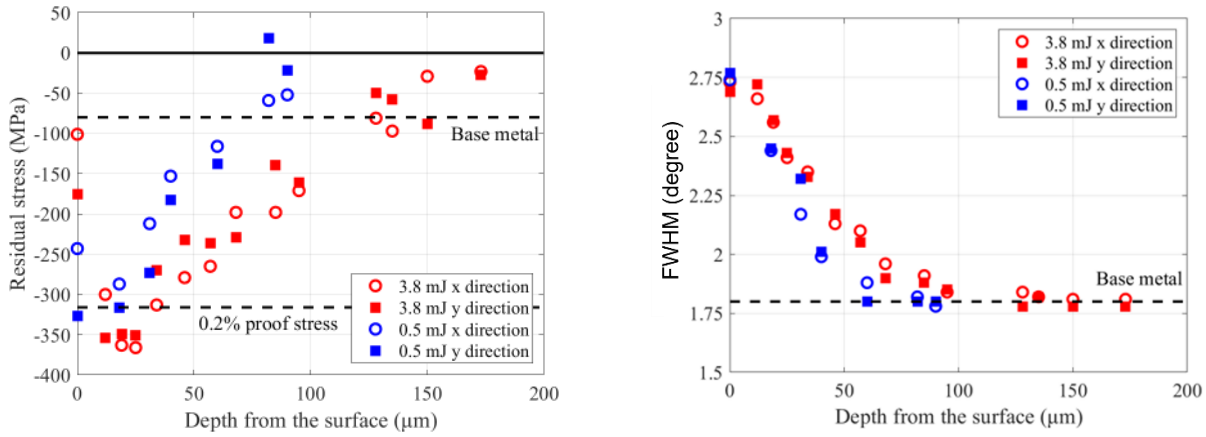


(b) Residual phase difference at twice the beam radius.

Fig. 6.23 (a) Residual phase difference at each position of the laser focus axis, taking into account diffraction, optical Kerr effect, and plasma defocusing at the beam radius position for pulse energy of 3.0 mJ. (b) Residual phase difference at each position of the laser focus axis, taking into account diffraction, optical Kerr effect, and plasma defocusing at twice the beam radius position for pulse energy of 3.0 mJ.

6-5-2　ピーニング効果付与に及ぼすフルエンスとアブレーション径の影響

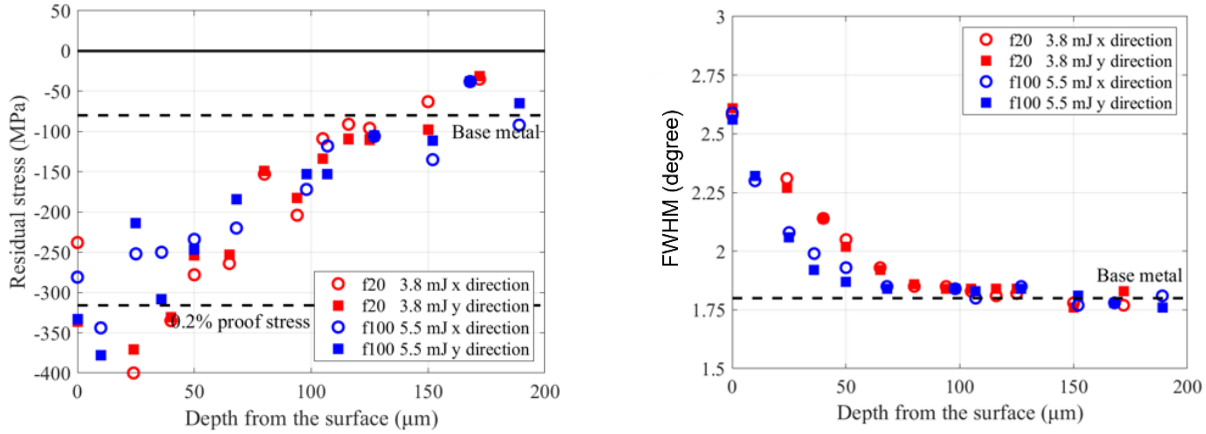
パルスエネルギー3.8 mJ 条件と 0.5 mJ 条件でのピーニングによる圧縮残留応力および半値全幅の推移の比較を Fig. 6.24 に示す。これらの条件は推定 100 J/cm^2 の大きなフルエンスであるが、0.5 mJ 条件では圧縮残留応力付与深さや半値全幅の増加領域は顕著に小さいことが観察できる。半値全幅の増加領域はおよそアブレーション径程度であり、圧縮残留応力はその位置から少し深くまで付与された。特に、0.5 mJ 条件ではアブレーション半径が 25 μm であり、その深さ位置から急激な半値全幅の低下が確認できる。以上より、第 5 章と同様に、十分にフルエンスが高い条件でもアブレーション径が小さい条件では衝撃波の深さ方向の伝搬に不利であることが示された。



(a) Residual stress distribution.　　(b) FWHM distribution.

Fig. 6.24 Effect of ablation diameter on peening under different pulse energy conditions.

次に、パルスエネルギー5.5 mJ の球面平凸レンズ焦点距離 100 mm 集光条件とパルスエネルギー 3.8 mJ の対物レンズ焦点距離 20 mm 集光時のアブレーション径 180 μm 条件でのピーニングによる圧縮残留応力および半値全幅の推移の比較を Fig. 6.25 に示す。パルスエネルギー3.8 mJ の対物レンズ焦点距離 20mm 集光条件では 30 J/cm^2 程度のピークフルエンスであり、それに伴って表層の半値全幅の増加量が大きい。一方、焦点距離 100 mm 集光条件では全体が 20 J/cm^2 程度のフルエンスであり、表層の半値全幅の増加量は小さい。しかし、半値全幅の微増加領域が深くまで持続し、この深さは焦点距離 20 mm 集光条件と同程度と考えられる。圧縮残留応力分布も同様の傾向を持っており、焦点距離 100 mm 集光条件では表層で圧縮残留応力値が焦点距離 20 mm 集光条件よりも弱い値であるが、圧縮残留応力付与深さは同程度である。アブレーション径が同一の条件下で、やや低フルエンスのフラットトップ分布で同様の深さを得られていることから、ガウシアン形状よりもフラットトップ分布の方が衝撃圧力減衰を抑制できると示唆される。ただし、フルエンス分布の形状よりも、パルスエネルギーやフルエンス、アブレーション径の影響が支配的であるため、フルエンス分布の形状を意図的に変化させるほどの利点はないと結論できる。

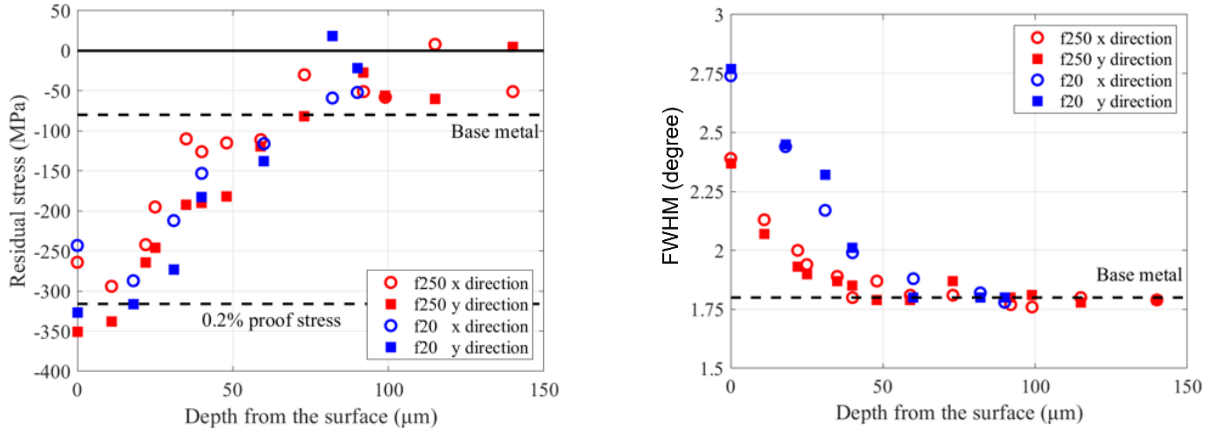


(a) Residual stress distribution. (b) FWHM distribution.

Fig. 6.25 Effect of fluence distribution on peening effect.

フルエンスとアブレーション径はどちらもより大きい条件がピーニング効果に有効であるが、一般的に扱えるパルスエネルギーには上限がある。そのため、パルスエネルギーが同等の条件で、高開口数条件と一般的な開口数条件を比較し、フルエンスを高めることの有効性について議論する。

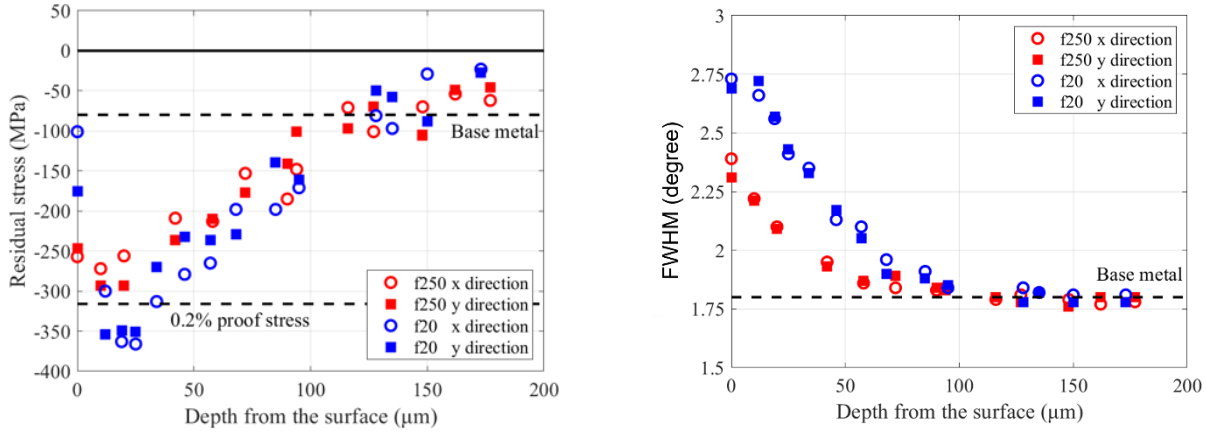
同一のパルスエネルギー0.5 mJ 条件において、本集光条件と第 5 章の焦点距離 250 mm レンズを用いた条件でのピーニングによる圧縮残留応力および半値全幅の推移の比較を Fig. 6.26 に示す。強く集光した条件では、半値全幅の増加量が大きく、高フルエンスレーザ照射による塑性変形量の増加が明らかである。一方で、圧縮残留応力分布や半値全幅の増加領域の深さに大きな違いは見られなかった。同等のパルスエネルギーにおいて、フルエンスが高くアブレーション径が小さな条件では、表層の塑性変形量が大きい代わりに、小さなアブレーション径により、その高い衝撃圧力の衝撃波は急激に減衰することが示唆される。これらは 6-5-4 で詳しく述べる。パルスエネルギーに上限がある場合、より開口数の高い条件で高いフルエンスを照射することで、衝撃影響深さはそのままに、表層の塑性変形量・強化量を大幅に向上することで、良好なピーニング効果を得られると考えられる。



(a) Residual stress distribution. (b) FWHM distribution.

Fig. 6.26 Influence of laser focusing on peening at a pulse energy of 0.5 mJ.

およそ同一のパルスエネルギー約 3.0 mJ 条件において、本集光条件（パルスエネルギー3.8 mJ）と第 5 章の焦点距離 250 mm レンズを用いた条件（パルスエネルギー3.0 mJ）でのピーニングによる圧縮残留応力および半値全幅の推移の比較を Fig. 6.27 に示す。強く集光した条件では、半値全幅の増加量が大きく、高フルエンスレーザ照射による塑性変形量の増加が明らかである。また、表層の圧縮残留応力値もより高い結果であることが示された。一方で、圧縮残留応力分布や半値全幅の増加領域の深さに大きな違いは見られなかった。これらのことから、パルスエネルギーに上限がある場合、より開口数の高い条件で高いフルエンスを照射することで、衝撃影響深さはそのままに、表層の塑性変形量・強化量を大幅に向上することで、良好なピーニング効果を得られると考えられる。本研究室で扱えるパルスエネルギーの範囲内で、最適なピーニング効果を得られる条件は本集光条件のパルスエネルギー3.8 mJ 条件であると考えられる。より大きなパルスエネルギーを扱える場合、フルエンスは 100 J/cm^2 程度としアブレーション径を本条件よりも拡大することで、より深くまでピーニング効果を付与できると考えられる。



(a) Residual stress distribution.　　(b) FWHM distribution.

Fig. 6.27 Influence of laser focusing on peening at a pulse energy of 3.0 mJ.

6-5-3　フェムト秒パルスレーザ誘起衝撃波におけるフルエンスと衝撃圧力の関係性

ピーニング実験において、十分に高いフルエンスのレーザ照射は、圧縮残留応力の付与深さを拡大する効果があることが示された。特に、フルエンスの増加は半値全幅の増加と関連しており、高い衝撃圧力による材料の塑性変形量の増加が示唆される。以下に、フェムト秒パルスレーザ誘起衝撃圧力の推定値について、文献におけるさまざまな報告例を示す。

文献[1]では、鉄鋼材料に対してパルス幅 100 fs、フルエンス 3 J/cm^2（推定レーザ強度 2.8×10^{13} W/cm^2）のフェムト秒レーザ誘起衝撃波を観察し、表層から深さ 250 nm 位置では 27.5 GPa、深さ 540 nm 位置では 11 GPa と推定された。数 J/cm^2 程度の小さなフルエンスでは衝撃圧力は小さい。

文献[2]では、アルミニウムに対してパルス幅 110 fs、フルエンス 1.3 から 32 J/cm^2（推定レーザ強度 1.0×10^{13} W/cm^2 から 2.7×10^{14} W/cm^2）の範囲で変化させたフェムト秒レーザ誘起衝撃波を観察し、フルエンス 32 J/cm^2 における初期衝撃圧力は 1000 GPa と推定した（Fig. 1.15）。

文献[3]では、アルミニウムに対してパルス幅 120 fs のフェムト秒レーザ誘起衝撃波を観察し、レーザ強度 7.7×10^{13} W/cm^2（推定フルエンス 10 J/cm^2）対しては、深さ 400 nm 位置で 100 GPa と推定された。レーザ強度 2.6×10^{14} W/cm^2（推定フルエンス 33 J/cm^2）に対しては、深さ 400 nm 位置での

衝撃圧力を 250 GPa と推定された。

他にも 10 J/cm^2 程度のフルエンスに対して、1000 GPa を超える衝撃圧力が報告されている[4-6]。このように、高フルエンス領域の超短パルスレーザ照射条件では、数百 GPa 程度の圧力が得られ、数百 nm の伝搬とともに減衰することが示される。

本章の超短パルスレーザ照射条件は、フルエンスは 20 J/cm^2 から 100 J/cm^2、レーザ強度は 1.9×10^{14} W/cm^2 から 9.3×10^{14} W/cm^2 であるため、初期衝撃圧力は 500 GPa から 1000 GPa を超える圧力と推定される。フルエンスに応じて衝撃圧力が高まるため、高フルエンス条件ほど塑性変形量が大きく、半値全幅の増大が得られたと考えられる。

6-5-4　衝撃波伝搬深さの衝撃圧力とアブレーション径依存性

ピーニング実験において、十分に高い同等のフルエンス条件であっても、大きなアブレーション径では深い圧縮残留応力付与領域や半値全幅増加領域を形成できる一方、小さなアブレーション径ではこれらが浅くなることが観察された。したがって、衝撃圧力だけでなく、アブレーション径が衝撃波の伝搬に与える影響も示唆される。これについては、衝撃波伝搬の基本的な知見から説明できる[7-11]。衝撃波が物質内を伝搬する際、伝搬とともに衝撃圧力が低下する要因として、エネルギー損失、幾何学効果、希薄波の 3 つが挙げられる。

I. エネルギー損失：一般的に、衝撃波が固体内部を伝搬する際、材料はまず弾性変形する。十分に高い圧力に達すると、塑性変形が開始される。この圧力をユゴニオ弾性限界（Hugoniot elastic limit）と呼び、ひずみ速度に依存して高まる[12]。アルミニウムに対しては数 GPa から 10 GPa 程度である。ユゴニオ弾性限界を超える圧力を持つ衝撃波は、材料の塑性変形（格子欠陥や線欠陥導入）にエネルギーを消費する。このエネルギー損失は圧力が高いほど、大きくなる[8]。

II. 幾何学効果（幾何学的膨張効果：Geometrical expansion effect）：衝撃波は一般的な波と同様に、回折によって拡散するため、塑性変形に関係なく衝撃圧力は伝搬とともに低下する。衝撃波生成領域が伝搬深さに対して広い場合、伝搬挙動は平面波として扱うことができ、回折による拡散は無視できる。一方、衝撃波生成領域が伝搬深さに対して狭い場合、伝搬挙動は球面波として扱われ、回折による拡散が大きくなる。およそ衝撃波生成領域の半径程度の深さまでは平面波、半径よりも深い領域では球面波として扱われる[8]。これを幾何学効果または幾何学的膨張効果と呼ぶ。最も高い圧力が深くまで伝搬される位置は衝撃波生成領域の中心である。

レーザ誘起衝撃波の場合、アブレーション半径の深さまで平面波の伝搬とする場合が一般的である[13,14]。アブレーション半径よりも深い領域では、二次元の球面波広がりを持つ伝搬となる。フラットな波面を持つ衝撃波（フラットなフルエンス分布によるレーザ照射）の場合は円筒衝撃波、球面の波面を持つ衝撃波（ガウシアン分布などのレーザ照射）の場合は球面衝撃波とみなすことができる。球面衝撃波は円筒衝撃波よりも回折広がりによる衝撃圧力の低下が大きい特徴がある。

III. 希薄波（Rarefaction wave、または膨張波）：希薄波は、引張の応力を伝搬する波であり、衝撃荷重方向に生じる反射希薄波と、衝撃波生成領域の外縁部から生じるエッジ波の 2 つの波から構成される[9,11]。希薄波が衝撃波に追いつくことで、衝撃圧力は減衰が生じる。反射希薄波が追いつく距離は、衝撃荷重時間が長くなるほど深くなる。一方、エッジ波は衝撃波生成領域に関係なく、

衝撃波生成半径の 1.3 倍程度の深さ位置で追いつくと考えられている[8]。

まとめると、ユゴニオ弾性限界を超える高い圧力を持つ衝撃波は、まずエネルギー損失の影響を受けながら平面波として伝搬し、次にアブレーション半径程度で球面波として回折広がりを生じ始め、最後に希薄波による減衰を受け、最終的に圧力は失われる。このような衝撃波の伝搬は、微小領域では分子動力学法を用いて研究され、マクロな領域では流体力学的シミュレーション（例：iSALE-2D など）を用いて研究されている。

フェムト秒レーザ衝撃波については、Shepelev らによって詳細に調査された[14]。彼らは分子動力学法と流体力学計算を用いて、衝撃圧力の伝搬を可視化した。そして、マクロな領域では、衝撃波伝搬を平面波伝搬、円筒波伝搬、球面波伝搬の 3 つのケースに場合分けし、下記の計算方法を用いて、伝搬時の衝撃圧力を近似的に示すことができると報告した。

I. 平面波伝搬計算：アブレーション半径よりも浅い領域において、一次元の平面波伝搬を仮定でき、深さz方向の圧力推移$P(z)$は次のように表される。

$$P(z) = \frac{P_0}{\sqrt{1 + \alpha \frac{P_0}{B_{s,i}} \frac{z - z_0}{l_0}}} \tag{6.12}$$

P_0：初期衝撃圧力、l_0：初期衝撃幅（長さ単位）、z_0：衝撃発生位置、αと$B_{s,i}$は Mie-Gruneisen 状態方程式に関連するパラメータであり、

$$\alpha = \frac{1}{2} \frac{\{n(n+1) - (G+1)(G+2)\} x_i^n + (G+1)(G+2)}{(n - G - 1) x_i^n + G + 1} \tag{6.13}$$

$$B_{s,i} = P_g \{(n - G - 1) x_i^n + G + 1\} \tag{6.14}$$

G：Gruneisen パラメータ、x_i：圧縮率、その他は状態方程式を近似関数とするための係数であり、

$$n = \frac{P_n (a - b)}{P_g} \tag{6.15}$$

係数の値はそれぞれ、$P_n = 560.964$ GPa、$a = 1.1266$、$b = 0.9775$、$P_n = 15$ GPa である。また、伝搬とともに衝撃幅が広がるため、

$$l(z) = l_0 \sqrt{1 + \alpha \frac{P_0}{B_{s,i}} \frac{z - z_0}{l_0}} \tag{6.16}$$

zが十分に大きな領域において、以下の比例関係にある。

$$P(z) \propto \frac{1}{z^{1/2}} \tag{6.17}$$

$$l(z) \propto z^{1/2} \tag{6.18}$$

衝撃圧力に応じて波の速度が異なるために、衝撃幅が広がり（分散し）ながら最大衝撃圧力が低下する。しかし、一次元の平面波伝搬では、衝撃圧力と衝撃幅の積は一定に保たれる。

II. 円筒衝撃波伝搬計算：アブレーション半径R_aよりも深い領域において、円筒衝撃波を仮定できる場合、深さr方向の圧力推移$P(r)$、衝撃幅推移$l(r)$は次のように表される。

$$P(r) = \sqrt{\frac{R_a}{r}} \frac{P_0}{\sqrt{1 + 2\alpha \frac{P_0}{B_{s,i}} \frac{R_a}{l_0} \left(\sqrt{\frac{r}{R_a} - 1} \right)}} \tag{6.19}$$

$$l(r) = l_0 \sqrt{1 + 2\alpha \frac{P_0}{B_{s,i}} \frac{R_a}{l_0} \left(\sqrt{\frac{r}{R_a} - 1} \right)} \tag{6.20}$$

係数の値はIと等しい。rが十分に大きな領域において、以下の比例関係にある。

$$P(r) \propto \frac{1}{r^{3/4}} \tag{6.21}$$

$$l(r) \propto r^{1/4} \tag{6.22}$$

したがって、平面波伝搬の場合よりも伝搬に伴う圧力の減衰は大きくなる。また、半径方向への拡散により、衝撃圧力と衝撃幅の積は一定でなくなり、伝搬とともに消失する。この近似計算は、衝撃波生成領域の中心座標でのみ成り立つ。

III. 球面衝撃波伝搬計算：アブレーション半径R_aよりも深い領域において、球面衝撃波を仮定できる場合、深さr方向の圧力推移$P(r)$、衝撃幅推移$l(r)$は次のように表される。

$$P(r) = \frac{R_a}{r} \frac{P_0}{\sqrt{1 + \alpha \frac{P_0}{B_{s,i}} \frac{R_a}{l_0} ln \frac{r}{R_a}}} \tag{6.23}$$

$$l(r) = l_0 \sqrt{1 + \alpha \frac{P_0}{B_{s,i}} \frac{R_a}{l_0} ln \frac{r}{R_a}} \tag{6.24}$$

係数の値はIと等しい。rが十分に大きな領域において、以下の比例関係にある。

$$P(r) \propto \frac{1}{r\sqrt{lnr}} \tag{6.25}$$

$$l(r) \propto \sqrt{lnr} \tag{6.26}$$

したがって、平面波伝搬や円筒波伝搬の場合よりも伝搬に伴う圧力の減衰は大きくなる。また、拡散により衝撃圧力と衝撃幅の積は一定でなくなり、伝搬とともに消失する。この近似計算は、衝撃波生成領域の中心座標でのみ成り立つ。

以上の知見から、アブレーション半径を境に伝搬挙動を変更することで、伝搬への幾何学的な影響を見積もることができる。Fig. 6.28 に、文献[14]で報告された初期衝撃圧力 50 GPa の伝搬を桃線、100 GPa の伝搬を赤線で示す。文献で扱われた値は、$G = 1.2$、$P_0 = 50, 100$ GPa、$l_0 = 133$ nm、$z_0 =$

270 nm である。グリュナイゼンパラメータに対応する値x_iは 0.05 であった。アルミニウムの塑性変形に必要なユゴニオ弾性限界を 5 GPa と仮定し、5 GPa に減衰する深さをピーニング効果付与深さと表現している。一次元の平面波伝搬では、衝撃幅広がりによる圧力減衰が生じ、50 GPa では 5 μm で 5 GPa に減衰し、100 GPa では 10 μm で 5 GPa に減衰する。アブレーション半径が小さな条件では、アブレーション半径の深さにて衝撃波伝搬挙動が変化し、円筒衝撃波の場合は緑線（2 番）、球面衝撃波の場合は青線（3 番）となる。数式で示された通り、球面衝撃波は圧力の減衰が大きく、小さなアブレーション径は衝撃圧力の伝搬に不利益であることが示される。また、アブレーション径が十分に大きくとも、初期衝撃圧力や初期衝撃幅が文献の通りの場合、塑性変形が可能な領域は深さ 10 μm であることが報告されている。

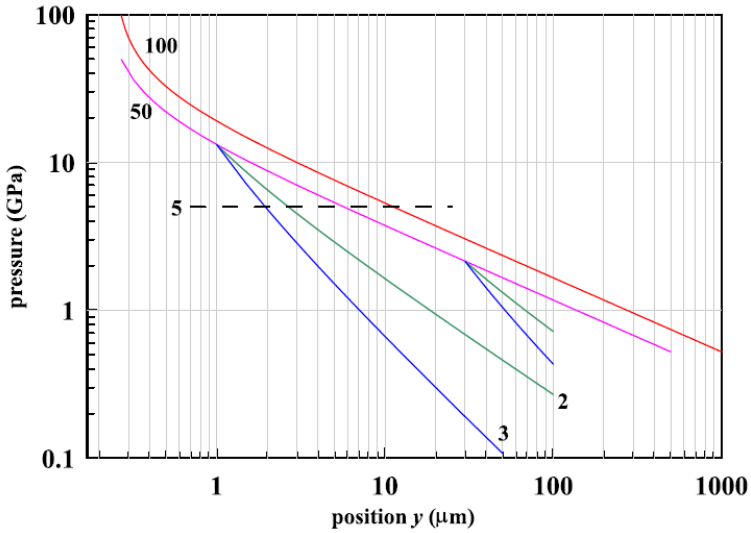


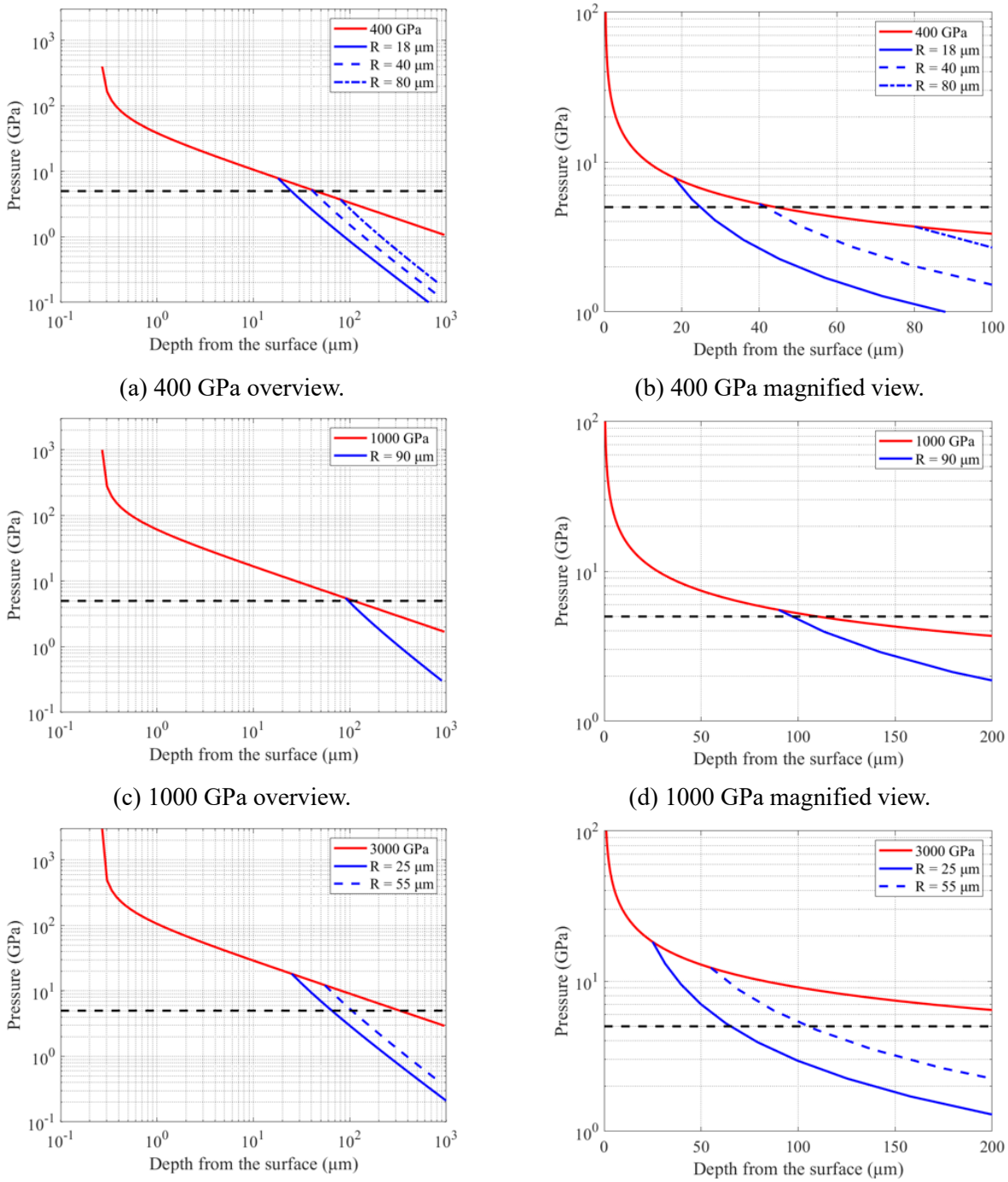
Fig. 6.28 Attenuation during femto-shock wave propagation [14].

文献で設定された初期衝撃圧力 100 GPa は、文献[1-6]の報告から、フルエンス約 5-6 J/cm^2 に対応すると考えられる。本研究のような 10 J/cm^2 から 100 J/cm^2 の高フルエンス領域の超短パルスレーザ照射条件では、100 GPa よりも高い初期衝撃圧力が得られることが予想される。そのため、10 μm よりも深いピーニング効果を得ることが可能である。そこで、本実験条件に合わせた推定初期衝撃圧力とアブレーション半径を用いて、上記と同様の方法で伝搬時の圧力を算出する。

代表的なフルエンス値として、15 J/cm^2、30 J/cm^2、100 J/cm^2 を想定し、初期衝撃圧力を 400 GPa、1000 GPa、3000 GPa とした。100 J/cm^2 に対応する衝撃圧力は報告されていないため、文献[2]の傾向から推定した。また、フルエンス 15 J/cm^2 の場合のアブレーション半径は 18 μm、40 μm、80 μm の 3 つとし、これらは第 5 章の f250 集光条件の 0.1 mJ、0.5 mJ、3.0 mJ 条件に相当する。フルエンス 30 J/cm^2 の場合のアブレーション半径は 90 μm とし、フルエンス 100 J/cm^2 の場合のアブレーション半径は 25 μm、55 μm の 2 つとした。これらは本章の f100 集光条件、f20 集光条件の 0.5 mJ、3.8 mJ 条件に相当する。初期衝撃圧力ごとの平面波伝搬計算結果を赤線で、アブレーション半径からの球面波伝搬計算結果青線で Fig. 6.27 に示す。

Fig. 6.29(a),(b)より、初期衝撃圧力 400 GPa 条件では、平面波伝搬における塑性変形可能な深さが約 45 μm であることが示される。それよりも小さなアブレーション径での加工は、より浅い塑性変

形領域となることが示される。Fig. 6.29(c),(d)より、初期衝撃圧力 1000 GPa 条件では、平面波伝搬における塑性変形可能な深さが約 110 μm であることが示される。Fig. 6.29(e),(f)より、初期衝撃圧力 3000 GPa 条件では、平面波伝搬における塑性変形可能な深さが約 330 μm であり、非常に深くまで導入できることが示唆される。ただし、それらよりも小さなアブレーション径では、浅い位置で顕著な減衰が開始され、アブレーション半径 25 μm では 65 μm、アブレーション半径 55 μm では 105 μm 程度の塑性変形領域となることが予測される。



(a) 400 GPa overview.

(b) 400 GPa magnified view.

(c) 1000 GPa overview.

(d) 1000 GPa magnified view.

(e) 3000 GPa overview.

(f) 3000 GPa magnified view.

Fig. 6.29 Approximate calculation of pressure propagation at each initial shock pressure.

これらの算出された塑性変形が生じる深さと、ピーニング実験結果である半値全幅の増加領域を取り、比較を行った結果を Fig. 6.30 に示す。算出値と実験結果は比較的一致しており、レーザ照射時のフルエンスとアブレーション径から、ピーニング効果付与深さの予測が可能であることが示唆される。第 5 章の焦点距離 250 mm 集光条件（フルエンス 15 J/cm^2 条件）では、算出値よりも実験結果の方が常に塑性変形領域が大きい。これは衝撃圧力や衝撃幅の推定値が真の値より小さい可能性があることを示唆する。フルエンス 15 J/cm^2 条件に対しては、文献[2]における衝撃圧力推定値である 400 GPa を用いたが、1000 GPa と推定する文献も存在する。例えば、衝撃圧力が 600 GPa と仮定すると、Fig. 6.31 のように、より良好な一致を示すことができる。衝撃圧力や衝撃幅は文献によって数倍の誤差があるため、これらの定量性は目安であることに留意する。本考察で重要なことは、初期衝撃圧力とアブレーション径に伴うピーニング効果の傾向を、算出値だけでなく実験的に確認できたことである。

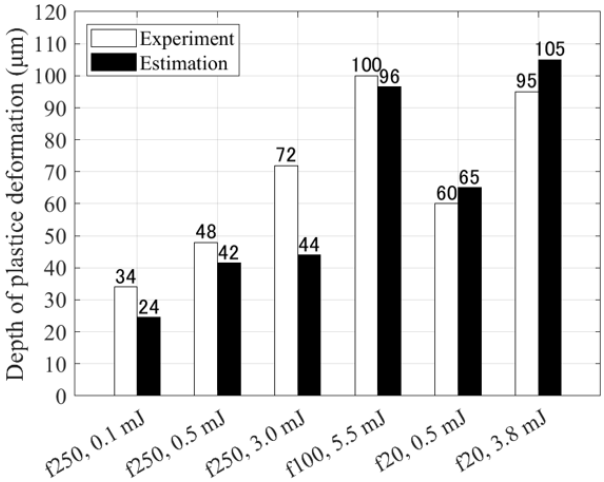


Fig. 6.30 Comparison of calculated values of plastic deformation area and half-width increase area after peening application for each irradiation condition (Condition: f250 = 15 J/cm^2 = 400 GPa, f100 = 30 J/cm^2 = 1000 GPa, f20 = 100 J/cm^2 = 3000 GPa).

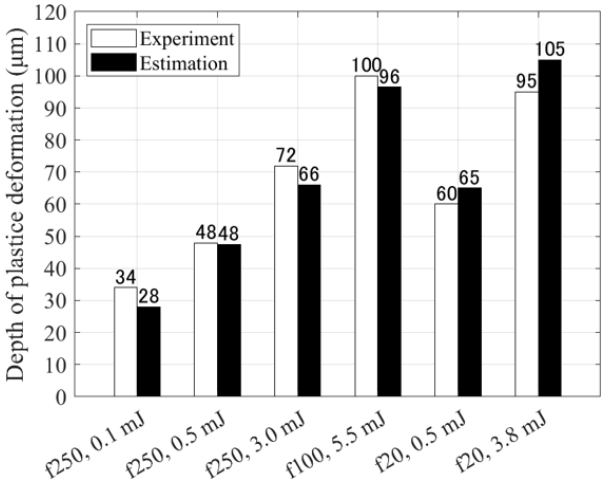


Fig. 6.31 Comparison of calculated values of plastic deformation area and half-width increase area after peening application for each irradiation condition (Condition: f250 = 15 J/cm^2 = 600 GPa, f100 = 30 J/cm^2 = 1000 GPa, f20 = 100 J/cm^2 = 3000 GPa).

以上より、初期衝撃圧力が数百 GPa 以上の条件における塑性変形領域やピーニング効果付与領域は、アブレーション径による制約を顕著に受けることが明らかである。塑性変形領域が最大となる深さは、初期衝撃圧力に対して十分にアブレーション径が大きく、平面波伝搬を仮定でき、ユゴニオ弾性限界圧力を超える深さである。これは(6.12)式をzについて解くことにより、初期衝撃圧力P_0に対するユゴニオ弾性限界圧力P_hとなる深さを求めることができる。

$$P_h = \frac{P_0}{\sqrt{1 + \alpha \frac{P_0}{B_{s,i}} \frac{z(P_0) - z_0}{l_0}}} \tag{6.27}$$

$$z(P_0) = z_0 + \frac{B_{s,i}}{\alpha P_0} l_0 \left\{ \left(\frac{P_0}{P_h} \right)^2 - 1 \right\} \approx \frac{B_{s,i}}{\alpha P_h^2} l_0 P_0 \tag{6.28}$$

Fig. 6.32 に示すように、初期衝撃圧力がユゴニオ弾性限界圧力よりも十分に大きい条件では、塑性変形深さは初期衝撃圧力に比例する。100 GPa 程度の衝撃圧力に対応するフルエンス（数 J/cm^2）では、塑性変形可能な深さは 10 μm 程度と浅いため、少なくとも数百 GPa 程度の衝撃圧力を得られる 15 J/cm^2 以上のフルエンスが適切である。1000 GPa を超える初期衝撃圧力条件においては、ユゴニオ弾性限界圧力に達する深さが 100 μm 以上となるため、アブレーション半径が 100 μm 以下の条件では幾何学的膨張効果の影響を受ける。したがって、理想的には高い衝撃圧力条件では、それに応じたアブレーション径の拡大が求められる。ただし、パルスエネルギーには上限があるため、フルエンスを高めつつアブレーション径を拡大することはトレードオフの関係である。さらなる塑性変形領域拡大にはパルスエネルギーの上限拡大が必要不可欠である。

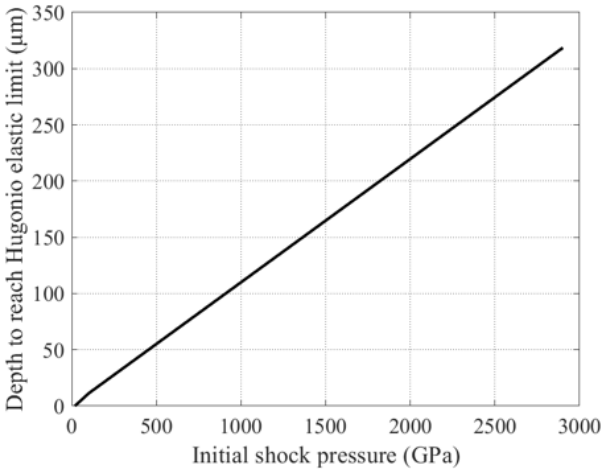


Fig. 6.32 Depth to reach the hugoniot elastic limit for initial shock pressure assuming plane wave propagation.

なお、この近似的な計算では希薄波やエネルギー損失を考慮していない。反射希薄波やエネルギー損失はアブレーション径に依存しない現象であるが、実験結果はアブレーション径に依存するため、これらは衝撃波伝搬に対して支配的な現象ではないと考えられる。一方、衝撃波生成領域のエッジ希薄波はアブレーション径に依存する現象であるため、幾何学効果と同様に影響を及ぼしている可能性がある。ただし、エッジ希薄波による減衰の対策は、幾何学効果と同様に、アブレーション径の拡大であり、結論は不変である。

6-6　結言

本章では高フルエンス超短パルスレーザ加工への適用を目的に、高開口数条件のレーザ集光特性を調査した。また、有効な集光条件を用いてドライレーザピーニングを行い、以下の結果を得た。

1. 開口数を高めることでフルエンスを高めることができることが示された。ただし、焦点距離 30 mm 条件では球面収差の影響を受け、上流側でリング状のフルエンス分布およびアブレーション分布となった。焦点距離 100 mm のレンズを用いることで、焦点位置より上流側で疑似的にフラットトップのフルエンス分布での加工が可能である。
2. 球面収差補正のある焦点距離 20 mm のレンズを用いることで、大気中でも 100 J/cm^2 を超えるフルエンスが得られ、レーザ照射 1 発あたりのアブレーション深さ 5 μm を得ることができた。大気プラズマ飽和時の位相変化量パラメータを基準に、大気の電離閾値 10^{14} W/cm^2 程度のレーザ強度の制約を一桁上回ることができると考えられた。これは大気の電離閾値程度のレーザ強度に到達する際に、電場の波面の位相差が十分に残されており、集光が持続するためと考えられた。
3. 30 J/cm^2 のフルエンスでのピーニング加工は、圧縮残留応力の付与と半値全幅の増加に十分なフルエンスであり、ピーニング効果付与深さは約 150 μm となった。20 J/cm^2 の疑似的なフラットトップ分布のフルエンスを用いたピーニング加工の効果付与領域は約 150 μm となり、焦点距離が極端に短くないレンズでも最大の圧縮残留応力分布を得ることができた。半値全幅はフルエンスの高さに応じて増加した。
4. 100 J/cm^2 のフルエンスでのピーニング加工は、表層の圧縮残留応力の付与と半値全幅の増加に有効であった。特に、半値全幅の最大値が増加し、塑性変形量の増加が示唆された。ただし、圧縮残留応力付与深さや半値全幅の増加領域はアブレーション径程度に制約され、深くまでピーニング効果を付与するためにはアブレーション径の拡大も必要であることが示された。
5. レーザ誘起衝撃波は、アブレーション半径まで平面波伝搬、アブレーション半径から球面波伝搬となり、幾何学的膨張により急激に衝撃圧力が低下することが知られている。100 J/cm^2 のフルエンスにおいて、アブレーション径の異なるピーニング加工を行った結果、ピーニング効果付与深さがアブレーション径に制約されることが示された。
6. 衝撃波の伝搬を近似計算によって分析することで、フルエンスとアブレーション径に応じた塑性変形可能な深さを予測できることが示唆された。算出された塑性変形可能な深さと、ピーニング実験による半値全幅増加領域は準定量的に一致した。
7. フルエンスは初期衝撃圧力を高めるため、深くまで高い衝撃圧力を伝搬させるために必要である。アブレーション径が十分に大きな条件において、深さ 100 μm 程度までピーニング効果を得るためには、約 30 J/cm^2 のフルエンスが必要であることが示唆された。フルエンスの上昇やアブレーション径の増加はどちらもピーニング加工に有効であり、フルエンスの高さに応じてアブレーション径を拡大すべきである。
8. パルスエネルギー5.5 mJ において、焦点距離 20 mm レンズ集光条件や焦点距離 100 mm レンズ集光条件を用いて、ピーニング効果付与深さは最大化されたと考えられる。パルスエネルギーをさらに増加することで、さらに深くまでピーニング効果を得ることができると考えられる。
9. パルスエネルギーに上限がある場合には、高開口数によるレーザ集光は表層の塑性変形量の増

加の観点から有効であり、パルスエネルギー3.8 mJ の高開口数条件が最も良好なピーニング効果を得られた。本研究室で扱えるパルスエネルギーの範囲内で、ピーニング加工に最適な条件が得られたと考えられる。

10. レーザ照射条件からレーザ伝搬計算、レーザ伝搬計算により得られたフルエンス、アブレーション径条件から衝撃波伝搬の近似計算を行うことで、レーザパラメータ設定からピーニング効果の予測まで可能となることが示された。より精度の高い予測のためには、フルエンスに対する初期衝撃圧力や衝撃幅の実測や、分子動力学計算や流体力学計算を用いた衝撃波伝搬計算への取り組みが必要である。

参考文献

[1] S. I. Ashitkov, P. S. Komarov, M. B. Agranat, G. I. Kanel, and V. E. Fortov, “Achievement of Ultimate Values of the Bulk and Shear Strengths of Iron Irradiated by Femtosecond Laser Pulses”, JETP Letters, Vol. 98, No. 7, pp. 384-388 (2013).

[2] A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, S. V. Makarov, L. V. Seleznev, and D. V. Sinitsyn, “Generation and Detection of Superstrong Shock Waves during Ablation of an Aluminum Surface by Intense Femtosecond Laser Pulses”, JETP Letters, Vol. 94, No. 1, pp. 34-38 (2011).

[3] R. Evans, A. D. Badger, F. Falliès, M. Mahdieh, and T. A. Hall, “Time- and space-resolved optical probing of femtosecond-laser-driven shock waves in aluminum”, Phys. Rev. Lett., Vol. 77, No. 16, pp. 3359-3362 (1996).

[4] N. Zhang, X. Zhu, J. Yang, X. Wang, and M. Wang, “Time-Resolved Shadowgraphs of Material Ejection in Intense Femtosecond Laser Ablation of Aluminum”, Phys. Rev. Lett., Vol. 99, No. 167602 (2007).

[5] E. I. Ageev, V. P. Veiko, S. I. Kudryashov, A. A. Petrov, and A. A. Samokhvalov, “Contact and Non-Contact Ultrasonic Diagnostics of Shock Waves Driven by Single-Shot Femtosecond Laser Ablation of Titanium”, JETP Letters, Vol. 102, No. 10, pp. 693-696 (2015).

[6] E. I. Ageev, S. I. Kudryashov, N. V. Nikonorov, R. K. Nuryev, A. A. Petrov, and A. A. Samokhvalov, “Non-Contact ultrasonic acquisition of femtosecond laser-driven ablative Mbar-level shock waves on Ti alloy surface”, Appl. Phys. Lett., Vol. 108, No. 084106 (2016).

[7] K. A. Holsapple, “The scaling of impact processes in planetary sciences”, Annu. Rev. Earth Planet. Sci., Vol. 21, pp. 333-373 (1993).

[8] 中澤暁、”玄武岩を用いた衝撃波の発生と減衰に関する実験的研究”、名古屋大学　博士論文 (1997).

[9] S. Nakazawa, S. Watanabe, Y. Iijima, and M. Kato, “Experimental Investigation of Shock Wave Attenuation in Basalt”, Icarus, Vol. 156, pp. 539-550 (2002).

[10] 真下茂、”衝撃圧縮を用いた固体の高圧相転移の研究”、高圧力の科学と技術、Vol. 17, No. 4 (2007).

[11] D. E. Grady, W. J. Murri, and P. S. De Carli, “Hugoniot Sound Velocities and Phase Transformations in Two Silicates”, J. Geophys. Res., Vol. 80, No. 35, pp. 4857-4861 (1975).

[12] D. Grady, “Structured shock waves and the fourth-power law”, J. Appl. Phys., Vol. 107, No. 013506 (2010).

[13] K. Nagaki, T. Kadono, T. Sakaiya, T. Kondo, K. Kurosawa, Y. Hironaka, K. Shigemori, and M. Arakawa, “Recovery of entire shocked samples in a range of pressure from ~100 GPa to Hugoniot elastic limit”, Meteorit Planet Sci, Vol. 51, No. 6, pp. 1153-1162 (2016).

[14] V. V. Shepelev, Yu. V. Petrov, N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, E. A. Perov, and S. V. Fortova, “Attenuation and inflection of initially planar shock wave generated by femtosecond laser pulse”, Opt. Laser Technol., Vol. 152, No. 108100 (2022).

第 7 章　結論

超短パルスレーザは、材料表面に機能性を付与するための表面処理加工に広く活用されている。高フルエンスの超短パルスレーザ照射によって生じる衝撃波は、レーザピーニングなどの衝撃加工を可能にする。しかしながら、高フルエンスの超短パルスレーザ加工では、集光過程で大気の電離閾値を超えるレーザ強度が生じ、これにより大気の非線形光学現象が引き起こされ、レーザ集光特性が変化する。その結果、アブレーション品質やエネルギー効率、衝撃加工品質などが大幅に変化する可能性がある。このような高フルエンス領域での超短パルスレーザ加工の特性制御や結果の予測、さらなる高度化を実現するためには、レーザパラメータに応じたレーザ集光特性を詳細に理解し、加工に及ぼす影響を解明する必要がある。また、レーザピーニング加工においては、照射されるフルエンスやアブレーション径などのレーザパラメータがピーニング効果に及ぼす影響を理解することが不可欠である。

高強度の超短パルスレーザは、カメラなどを破壊してしまうため、レーザ強度分布を直接実験的に観察することは不可能である。そこで、本研究では、金属への連続的なレーザ照射、アブレーション加工実験に加え、大気の非線形光学現象を考慮したレーザ伝搬シミュレーションを用いて、超短パルスレーザ集光特性のパルス幅依存性、パルスエネルギー依存性、開口数依存性の解明を試みた。また、超短パルスレーザ集光特性を支配する非線形光学現象を明らかにし、レーザ集光特性の予測や制御方法を提案した。さらに、それぞれの超短パルスレーザ集光特性において、アブレーション加工やピーニング加工を行い、加工特性を支配するレーザパラメータについて検討を行った。高フルエンス領域超短パルスレーザ加工のレーザ照射パラメータ選定の指針を与え、基礎基盤を構築した。以下に、本研究における研究成果を総括する。

第 1 章では、超短パルスレーザ加工の実用事例を示し、加工特性や加工効率の重要性について詳述した。レーザピーニングなどの高フルエンス領域の超短パルスレーザを必要とするレーザ衝撃加工において、大気の非線形光学現象やその影響によるレーザ集光特性変化の理解は不可欠であることを述べた上で、本研究の意義と目的について言及した。

第 2 章では、レーザ伝搬現象を支配する方程式について説明し、大気の非線形光学現象を考慮した計算方法と近似手法について詳細に述べた。また、大気の電離などの非線形光学現象の計算方法を示した。さらに、一般的なレーザ加工において重要なガウシアン強度分布を持つレーザ線形集光特性についても記述した。

第 3 章では、大気の電離閾値を超える強度の超短パルスレーザ加工におけるフェムト秒-ピコ秒領域のパルス幅依存性について調査した。高フルエンス領域の超短パルスレーザ加工においては、大気の存在によるレーザ発散の影響を受け、レーザ照射領域推移やアブレーション領域推移が変化することが観察された。等しいパルスエネルギー条件でも、パルス幅が短い条件ほどレーザ強度が高くなるため、レーザ集光位置の変化やアブレーション深さの減少が顕著であった。これらの条件

でレーザ衝撃加工の一種であるドライレーザピーニングを施工すると、フェムト秒パルスではレーザ発散現象によるフルエンスの低下が生じ、ピーニング効果の一つである圧縮残留応力付与は減少した。一方、数ピコ秒パルスでは、アブレーション深さはあまり減少しないが、熱影響の増加や衝撃影響の低減により、圧縮残留応力付与は減少したと考えられる。これらより、最適なピーニング施工の条件は、照射可能なフルエンスと熱影響のバランスによって決まると考えられる。本実験条件におけるドライレーザピーニング加工では、パルス幅 1 ps 条件で最も良好な圧縮残留応力分布を得られた。等しいフルエンスを照射可能な条件下では、アブレーションやピーニング加工において、熱影響を抑制できるフェムト秒パルス条件が効果的であると考えられる。以上より、レーザパラメータや集光条件ごとに照射可能なフルエンスを理解することは重要であり、大気の非線形光学現象を考慮した超短パルスレーザ集光特性の理解が不可欠であることが示された。

第 4 章では、大気の電離閾値を超えるレーザ強度に達するフェムト秒からピコ秒領域におけるレーザ集光特性に及ぼす大気の非線形光学現象について調査した。レーザ集光に伴い、自己位相変調による周波数スペクトルの変化が観察された。変化は主にブルーシフトで、径方向の外側に広がることが示された。これより、レーザ集光特性変化に支配的な非線形光学現象は、屈折率を低下させる大気の電離であることが示唆された。大気の非線形光学現象を考慮したレーザ伝搬計算により、周波数スペクトル変化は実験結果と良い一致を示した。大気プラズマ生成により、レーザ集光特性は線形伝搬時とは異なり、上流側でのレーザ発散やレーザ強度分布に変化が生じた。フェムト秒パルス条件では、レーザ発散が顕著であり、集光時の最大フルエンスは線形集光時の最大フルエンスの 10%まで低下した。ピコ秒パルス条件では、レーザ発散を抑制できるため、最大フルエンスを高く照射することが可能である。これらの結果は、実験結果の照射領域推移やアブレーション領域推移と良く一致した。

本実験条件のような大気の電離閾値を超えるレーザ強度に達するレーザ集光条件では、光カー効果の影響は小さい。支配的な非線形光学現象は大気のプラズマ生成であるため、レーザ集光特性はパルス内時間に応じて変化する。パルス後半のレーザは最もプラズマ蓄積の影響を受け発散するため、レーザ集光（発散）位置はパルス後方の発散現象によって決定された。レーザ集光に伴うプラズマ生成量や分布はパルス幅に依存するが、基本的に酸素分子のレーザ電離が支配的であった。窒素分子のレーザ電離は高強度条件でのみ生じた。フェムト秒パルスでは逆制動放射による電子エネルギーの上昇が不十分であるため衝突電離は生じず、ピコ秒パルスでは電子エネルギーが窒素分子のイオン化エネルギーを超えるため、衝突電離量が増加した。衝突電離は 1~2 ps 後に生じるため、パルスの伝搬への影響は小さく、ほとんどがレーザ電離によるものであることが示唆された。また、大気のレーザ電離と大気プラズマへの逆制動放射によるエネルギー損失は小さく、レーザ加工に影響を及ぼさないことが示された。

レーザアブレーション加工やピーニング加工において、レーザ発散を考慮した照射位置制御は重要である。レーザ発散が顕著な条件では、照射位置制御を行ってもアブレーションのエネルギー効率は低下するため、加工に不適切であった。レーザ発散が弱い条件では、アブレーション効率の低下は抑制でき、照射位置制御により適切な加工を行うことができる。結果として、パルス幅を長くすることで良好なアブレーション加工やピーニング加工を得られたと考えられる。最後に、回折や

大気の非線形光学現象の単位伝搬長さあたりの位相変化量を定義することにより、レーザ発散時のレーザ強度やフルエンスなどの集光特性を見積もることができた。また、フルエンス分布の非線形な変化が開始する位置やレーザ発散位置を推定する手法を考案した。これらは大気の電離閾値を超える強度、フルエンス領域の超短パルスレーザ加工におけるレーザパラメータ選定に貢献する。

第 5 章では、大気の電離閾値を超えるレーザ強度に達する超短パルスレーザ加工におけるサブ mJ-数 mJ パルスエネルギー依存性について調査した。大気の電離閾値を超える超短パルスレーザ加工では、大気の存在によりレーザ発散が生じ、パルスエネルギーが大きな条件ほど集光位置は上流側にシフトした。パルスエネルギーを増加してもアブレーション深さは増加せず、アブレーション径が拡大するのみであった。大気の非線形光学現象を考慮したレーザ伝搬計算によりフルエンス分布を算出した結果、パルスエネルギーを増加してもフルエンスは高まらないことが示され、実験結果のアブレーション領域推移と十分に一致した。高パルスエネルギー条件において、焦点位置で深いアブレーションが得られるが、これはコントラスト 2%のプリパルスによるものであると考えられた。焦点位置でのピーニングは効果が不十分であり、メインパルスが最も集光する位置への照射位置制御が適切であることが示された。

それぞれのパルスエネルギーで照射位置制御を行ったピーニングにおいて、カバレージや合計入力エネルギー量がおよそ一定の条件下で、パルスエネルギーの大きな条件では圧縮残留応力付与深さが増加した。また、圧縮残留応力計測時の半値全幅も同様に増加した。半値全幅は、フェムト秒レーザ衝撃波による塑性変形量の指標として扱うことができ、衝撃波伝搬深さおよびピーニング効果付与深さがアブレーション径に依存することを示唆する。パルス幅 100 fs、5 mJ のパルスエネルギー条件では、大気の非線形光学現象は顕著であり、照射位置制御を行ってもアブレーションのエネルギー効率は低く、加工に不適切であった。集光条件に応じて、加工に適切なパルスエネルギーには上限が生じると考えられた。回折や大気の非線形光学現象の単位伝搬長さあたりの位相変化量の考察から、本実験条件におけるレーザ発散時のレーザ強度やフルエンスを見積もることができた。また、フルエンス分布の非線形な変化が開始する位置やレーザ発散位置を推定する手法を考案した。アブレーション効率を下げずに大きなパルスエネルギーを扱うためには、開口数を高めることや施工雰囲気を変更することが有効である。

第 6 章では、開口数の高い条件でのレーザ集光特性を調査し、ピーニング加工のフルエンス依存性を調査した。開口数を高めることでフルエンスを高めることができることが示された。さらに、球面収差補正のある焦点距離 20 mm のレンズを用いることで、大気中でも 100 J/cm^2 を超えるフルエンスが得られ、レーザ照射 1 発あたりのアブレーション深さ 5 μm を得ることができた。大気プラズマ飽和時の位相変化量パラメータを基準に、大気の電離閾値 10^{14} W/cm^2 程度のレーザ強度の制約を一桁上回ることができると考えられた。これは大気の電離閾値程度のレーザ強度に到達する際に、電場の波面の位相差が十分に残されており、集光が持続するためと考えられた。100 J/cm^2 のフルエンスでのピーニング加工は、圧縮残留応力の付与と半値全幅の増加に有効であった。特に、半値全幅の最大値が増加し、塑性変形量の増加が示唆された。同フルエンスにおいて、アブレーション径の異なるピーニング加工を行った結果、ピーニング効果付与深さがアブレーション径に制約さ

れることが示された。パルスエネルギーに上限がある場合には、高開口数によるレーザ集光は表層の塑性変形量の増加の観点から有効であり、パルスエネルギー3.8 mJ の高開口数条件が最も良好なピーニング効果を得られた。本研究室で扱えるパルスエネルギーの範囲内で、ピーニング加工に最適な条件が得られたと考えられる。

衝撃波の伝搬を近似計算によって分析することで、フルエンスとアブレーション径に応じた塑性変形可能な深さを予測できることが示唆された。算出された塑性変形可能な深さと、ピーニング実験による半値全幅増加領域は準定量的に一致した。フルエンスは初期衝撃圧力を高め、深くまで高い衝撃圧力を伝搬させるために必要である。また、レーザ誘起衝撃波はアブレーション半径まで平面波伝搬、アブレーション半径から球面波伝搬となり、幾何学的膨張により急激に衝撃圧力が低下するため、大きなアブレーション径が必要である。パルスエネルギー5.5 mJ において、焦点距離 20 mm レンズ集光条件や焦点距離 100 mm レンズ集光条件を用いて、ピーニング効果付与深さは最大化されたと考えられる。パルスエネルギーをさらに増加することで、フルエンスの高さとアブレーション径の大きさを両立でき、ピーニング効果付与深さを拡大することができると考えられる。レーザ照射条件からレーザ伝搬計算、レーザ伝搬計算により得られたフルエンスとアブレーション径条件から衝撃波伝搬の近似計算を行うことで、レーザパラメータ設定からピーニング効果の予測まで可能となることが示された。より精度の高い予測のためには、フルエンスに対する初期衝撃圧力や衝撃幅の実測や、分子動力学計算や流体力学計算を用いた衝撃波伝搬計算への取り組みが必要である。

以上より、大気の電離閾値を超える強度、フルエンス領域での超短パルスレーザ集光特性の網羅的な理解やピーニング加工のレーザパラメータ依存性が明らかとなった。大気の非線形光学現象を考慮したレーザ伝搬計算により、定量的に実験結果を再現でき、アブレーション分布の予測やピーニング加工位置の自動制御に貢献する。また、衝撃波伝搬の近似計算により、フルエンスとアブレーション径条件からピーニング効果を再現でき、最適条件の選定に貢献する。本研究により、高フルエンス領域の超短パルスレーザ衝撃加工において、レーザパラメータの選定からピーニング効果付与までの学理を構築でき、CPS 型レーザ衝撃加工の実現に貢献した。

最後に、大気の電離閾値を超える強度の超短パルスレーザ集光特性の網羅的な理解や、それに付随する大気のプラズマ生成メカニズムの理解は、テラヘルツ波や極端紫外光などの光源開発技術に波及効果を有する。また、超短パルスレーザ衝撃加工は材料表面の新たな機能性付与の可能性を秘めている。このように、大気の電離閾値を超える強度、フルエンス領域の超短パルスレーザを活用した科学技術は、学術的・工学的なさらなる応用が期待できる。

謝辞

本論文は、大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻に在学中の研究をまとめたものであり、非常に多くの方々にご指導、ご助言を賜りました。

本研究を行う機会を与えていただき、研究を遂行するにあたり懇切丁寧なる御指導、ご鞭撻を賜りました大阪大学大学院工学研究科　佐野智一教授に心から感謝の意を申し上げます。著者の気の向くままに研究に取り組ませていただき、研究者としての哲学を育む機会をいただいたことに心より感謝いたします。

本論文の作成にあたり、貴重な御助言と御討論をいただきました大阪大学大学院工学研究科　神原淳教授、浜口智志教授、吉川洋史教授に深く感謝申し上げます。

本研究の遂行および本論文の作成に際し、数々の御教示をいただきました大阪大学大学院工学研究科　荻野陽輔准教授に深く感謝申し上げます。著者とは研究分野の異なる視点から御指導、御助言をいただき、著者にとって大変多くの学びがありました。

本研究を行う機会を与えていただき、学部および修士課程の研究におきまして、懇切丁寧なる御指導、御鞭撻を賜りました大阪大学大学院工学研究科　廣瀬明夫名誉教授に心から感謝の意を申し上げます。当初は未熟な研究発表を繰り返していましたが、温かく見守っていただいたことで、挫折することなく研究に励むことができました。

本研究の遂行に際し、数々の御教示をいただきました大阪大学大学院工学研究科　小椋智准教授に深く感謝申し上げます。異なる研究分野でしたが、研究への姿勢や精神面の御助言をいただきました。

本研究の遂行に際し、数々の御教示をいただきました大阪大学大学院工学研究科　野村和史講師に深く感謝申し上げます。著者とは異なるレーザ応用技術の視点から御指導、御助言をいただき、レーザ技術の見識を広げることができました。

本研究の遂行に際し、数々の御教示をいただきました大阪大学大学院工学研究科　松田朋己助教に深く感謝申し上げます。研究に取り組み始めた学部および修士課程の研究におきまして、親身にご相談に乗っていただきました。

本研究の遂行に際し、数々の御教示をいただきました量子科学技術研究開発機構　中新信彦博士に深く感謝申し上げます。実験や論文作成に御助言をいただいただけでなく、研究を進める上で数々の御配慮をいただきました。

数値シミュレーションについて多くの御助言をいただきました量子科学技術研究開発機構　神門正城博士、近藤康太郎博士、James Kevin Koga 博士に厚く御礼申し上げます。

超短パルスレーザ照射実験において御助力をいただきました東京大学大学院工学系研究科　杉田直彦教授、伊藤佑介講師に厚く御礼申し上げます。

X 線残留応力測定において御助力をいただきました大阪大学大学院工学研究科　大畑充教授に厚く御礼申し上げます。

本研究を遂行するにあたり、数々の御助力をいただきました、吉田雅幸修士、竹隈亮太修士、森祐大修士、井上聖流氏、江頭尚弥氏、小松原佳貴氏、堀田真尋氏、藤澤伸哉氏、樋口輝氏、光岡諒平氏、高見優梨子氏をはじめ、雑談にお付き合いいただいた佐野研究室の後輩各位に感謝いたします。

研究生活の駆け出しの時期に大変お世話になりました廣瀬研究室の先輩、同輩、後輩各位に感謝いたします。

長きにわたる大学生活をご支援いただきました親族の皆様に深く感謝申し上げます。

最後に、大学入学から博士論文執筆に至るまで大変長い期間、大変多くのご理解とご協力をいただきましたパートナーに心より感謝申し上げます。

本研究は 2021 年 4 月から 2022 年 3 月までの期間、大阪大学フェローシップ「量子リーダー人材（QLEAR）」の支援の下に実施しました。また、2022 年 4 月から 2024 年 3 月までの期間、日本学術振興会　特別研究員 DC2 の支援の下に実施しました。

本研究に関する発表論文

(1) 本論文に関連する発表主著論文

[1] I. Nishibata, M. Yoshida, Y. Ito, N. Sugita, A. Hirose, and T. Sano, “Pulse duration dependence of dry laser peening effects in the femtosecond-to-picosecond regime”, Appl. Phys. Express, Vol. 14, No. 062001 (2021).

[2] I. Nishibata, N. Nakanii, and T. Sano, “Focusing characteristic change and processing characteristic evaluation of femtosecond-to-picosecond pulse lasers above the air ionization threshold”, Opt. Continuum, Vol. 2, No. 7, pp. 1735-1751 (2023).

[3] I. Nishibata and T. Sano, “Nonlinear propagation calculation-based irradiation process control for several mJ ultrashort pulse laser processing”, Appl. Phys. Express, Vol. 16, No. 102002 (2023).

(2) 本論文に関連する発表共著論文

[1] M. Yoshida, I. Nishibata, T. Matsuda, Y. Ito, N. Sugita, N. Sugita, A. Shiro, T. Shobu, K. Arakawa, A. Hirose, and T. Sano, “Influence of pulse duration on mechanical properties and dislocation density of dry laser peened aluminum alloy using ultrashort pulsed laser-driven shock wave”, J. Appl. Phys., Vol. 132, No. 075101 (2022).

(3) 本論文に関連する国際会議発表

[1] I. Nishibata, T. Sano, T. Matsuda, A. Hirose, T. Shobu, and A. Shiro, “Dry Laser Peening of Pure Iron using Femtosecond Laser Pulses”, 2nd European Workshop on Laser Peening and Related Phenomena, Hamburg (Germany), September 2019. (Poster presentation)

[2] I. Nishibata, M. Yoshida, Y. Ito, N. Sugita, A. Hirose, and T. Sano, “Pulse duration dependence of laser peening effects in the femtosecond-to-picosecond regime”, The 22nd International Symposium on Laser Precision Microfabrication, Online, June 2021. (Oral presentation)

[3] I. Nishibata, M. Yoshida, Y. Ito, N. Sugita, A. Hirose, and T. Sano, “Pulse Duration Dependence of Dry Laser Peening Effects in the Femtosecond-to-Picosecond Regime”, The 25th SANKEN International Symposium, Online, January 2022. (Poster presentation)

[4] I. Nishibata, M. Yoshida, Y. Ito, N. Sugita, A. Hirose, and T. Sano, “Pulse Duration Dependence of Dry Laser Peening Effects in the Femtosecond-to-Picosecond Regime”, The 16th International Conference on Laser Ablation (COLA) 2021/2022, Matsue (Japan), April 2022. (Poster presentation)